

Titre: Développement et caractérisation d'un biofiltre pilote pour le traitement des eaux souterraines contaminées par les BTEX

Auteur: Geneviève Martineau

Date: 1999

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Martineau, G. (1999). Développement et caractérisation d'un biofiltre pilote pour le traitement des eaux souterraines contaminées par les BTEX [Master's thesis, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
Citation: <https://publications.polymtl.ca/8553/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/8553/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche:
Advisors:

Programme: Unspecified
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT ET CARACTÉRISATION D'UN BIOFILTRE PILOTE POUR
LE TRAITEMENT DES EAUX SOUTERRAINES CONTAMINÉES PAR LES BTEX

GENEVIÈVE MARTINEAU
DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES (M.Sc.A.)
(GÉNIE CHIMIQUE)
MAI 1999

© Geneviève Martineau, 1999



**National Library
of Canada**

**Acquisitions and
Bibliographic Services**

**395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

**Bibliothèque nationale
du Canada**

**Acquisitions et
services bibliographiques**

**395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-46658-2

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DÉVELOPPEMENT ET CARACTÉRISATION D'UN BIOFILTRE PILOTE POUR
LE TRAITEMENT DES EAUX SOUTERRAINES CONTAMINÉES PAR LES
BTEX

présenté par : MARTINEAU Geneviève

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. KLVANA Danilo, Ph. D., président

M. SAMSON Réjean, Ph. D., membre et directeur de recherche

Mme DESCHÊNES Louise, Ph.D., membre et codirectrice de recherche

M. COMEAU Yves, Ph. D., membre

*« Tout s'avale
en autant qu'il soit haché fin »*

Proverbe chinois

REMERCIEMENTS

Il y a d'abord mes directeurs, Réjean Samson et Louise Deschênes, que je remercie énormément pour m'avoir accordé mon fameux « projet de terrain » et pour m'avoir soutenue moralement et financièrement tout au long de mon projet. Je dois aussi remercier la vie, parce qu'elle m'a permis de croiser Josée Gagnon, ma responsable de module et ma perle rare, sans qui les jours m'auraient paru beaucoup plus longs...

Je tiens à remercier SNC-Lavalin, et plus particulièrement Luc Massicotte, pour avoir déniché le terrain et pour le temps qu'il a consacré au projet. Et que dire de mon bon Monsieur Fournier, qui veillait au grain à Trois-Rivières entre mes visites hebdomadaires... Merci ! Merci aussi aux partenaires de la Chaire ainsi qu'au CRSNG pour leur soutien financier, à mon projet en général et à ma personne en particulier.

En plus de tout ça, il y a Jérôme Breton que je remercie de tout cœur pour ses idées et ses doigts de fée (?!), Manon Leduc, Sandra Estrela et Yanick Matteau pour leur aide et soutien au laboratoire, Jean Huard pour les montages et les bonnes idées (lui aussi !), François Roberge pour ses bons conseils et son temps et enfin Jean-François Martineau, pour sa *cream* toute paternelle...

Il y a bien sûr les copines, Katia, Valérie, Marie-Julie, Nathalie et toutes les autres, qui étaient là quand j'en avais besoin, pour discuter, échanger, manger... Bref, pour partager ma vie pendant ces deux années et demie qu'a été ma maîtrise à Poly.

Je ne peux terminer sans dire un gros merci à Sonia, pour toutes ses belles attentions, et à mon cœur, François, sans qui j'aurais tout aussi bien fait ma maîtrise, mais avec qui je deviens une meilleure personne chaque jour.

RÉSUMÉ

L'étude de Forget (1997), portant sur la « Caractérisation d'un nouveau milieu filtrant pour la biofiltration *in situ* des BTEX dans les eaux souterraines », avait présenté des résultats intéressants quant à l'utilisation de la tourbe granulaire pour le traitement d'eau contaminée par le toluène et le benzène. Suite à cette démonstration, un concept de biofiltration *in situ* a été envisagé. L'objectif du présent projet était donc de développer et de tester un biofiltre pilote, pouvant par la suite être intégré dans un système plus large de restauration *in situ*.

En premier lieu, des essais préliminaires ont été réalisés pour s'assurer que des changements effectués dans le mode de production de la tourbe granulaire n'avaient pas affecté les propriétés microbiologiques et mécaniques du milieu. Il est ressorti que, d'une part, l'activité biologique était la même que précédemment et que, d'autre part, la porosité et la conductivité hydraulique du milieu avaient légèrement augmenté (90,2 % et 10^{-1} cm/s respectivement). Ce faisant, la tourbe granulaire était toujours un matériau intéressant pour la biofiltration.

Par la suite, deux configurations de biofiltres pilotes de 200 L ont été conçues : une unité en percolation et une autre saturée avec écoulement ascendant. Comme toutes deux semblaient posséder des avantages et des limites, les deux types de biofiltres ont été construits en duplicata afin d'être testés sur un terrain contaminé.

De juillet à décembre 1998, les biofiltres pilotes ont été en fonction à Trois-Rivières, sur le site d'une compagnie pétrolière ayant des eaux souterraines contaminées par les BTEX. Des échantillonnages et mesures ont été effectués régulièrement dans l'eau à l'entrée et à la sortie des biofiltres, mais à cause de problèmes techniques et de conditions opératoires difficiles, seule une courte période de biodégradation a été

observée. Les principaux problèmes rencontrés tenaient à la composition de l'eau souterraine et à la difficulté de maintenir des concentrations suffisantes en oxygène dissous à l'entrée des biofiltres. En effet, l'eau à traiter étant puisée au cœur du panache de contamination, elle contenait d'importantes concentrations en BTEX (environ 10 000 µg/L) et de fortes teneurs en fer(II) (35 mg/L) dues aux conditions anoxiques prévalant dans l'aquifère. Pour assurer la biodégradation aérobie des polluants, une aération de l'eau a été effectuée dans un bassin de rétention, provoquant la production massive d'oxydes ferriques et de biomasse. Les dépôts ainsi produits ont colmaté diffuseurs et distributeurs, rendant les paramètres opératoires tels les débits et la concentration d'oxygène dissous extrêmement instables.

Le suivi de l'activité microbienne au sein de la tourbe granulaire a été effectué à l'aide de microcosmes après 0, 8, 14 et 22 semaines de biofiltration. Ces essais ont permis de montrer qu'une adaptation de la flore bactérienne contenue dans la tourbe granulaire se produisait au cours du temps, car les temps de latence de 7 et 17 jours observés initialement pour la minéralisation du toluène et du *p*-xylène étaient complètement disparus par la suite. De plus, en fonction du temps de contact avec l'eau souterraine contaminée, une augmentation des taux maximums et des pourcentages finaux de minéralisation du toluène a été observée. Ainsi, entre la 8^{ième} et la 14^{ième} semaine d'opération des biofiltres, le taux maximal de minéralisation du toluène est passé de 0.3 à 0.47 mg/L.j et le pourcentage final de minéralisation est passé de 54 ± 3 à 68 ± 5 %. D'autres essais en microcosmes ont montré qu'après 14 semaines passées dans un biofiltre, les micro-organismes de la tourbe granulaire ont la capacité de minéraliser tous les composés BTEX, sans temps de latence et à des taux similaires (0.44 mg/L.j en moyenne). Lors de ces essais, 70 ± 10 % de minéralisation a été obtenu en 30 jours pour tous les BTEX.

Une analyse de la composition en nutriments de la tourbe granulaire a aussi expliqué pourquoi l'ajout de tampon phosphate dans l'eau des microcosmes favorisait la minéralisation du toluène. En effet, il a été montré que la tourbe granulaire neuve ne contient pas d'ortho-phosphate en quantité détectable et contient 35 mg/kg d'azote sous forme nitrite-nitrate. Ces derniers sont cependant rapidement lavés (en moins de deux semaines) lors de l'opération en continu. Ainsi, en présence de tampon phosphate (conditions environnementales non limitantes), des taux maximums et des pourcentages finaux de minéralisation aussi élevés que 0,73 mg/L.j et 80,9 % ont été obtenus lors de la dégradation du toluène en microcosmes.

Enfin, par des stérilisations sélectives, des essais en microcosmes réalisés avec du *p*-xylène ont servi à montrer l'apport des diverses populations bactériennes sur la minéralisation des contaminants. Suite à ces expériences, il a été déterminé qu'au départ, l'eau souterraine contaminée contenait plus de micro-organismes adaptés aux BTEX que la tourbe granulaire neuve (temps de latence nul par rapport à 17 jours). Malgré cela, la présence de tourbe en tant que support pour les micro-organismes est essentielle à la minéralisation. En effet, un essai de dégradation du toluène en présence d'eau souterraine et de billes de verre uniquement n'a présenté que 7 % de minéralisation après 35 jours d'essai. Par ailleurs, avec le temps, la microflore indigène de la tourbe granulaire s'adapte aux conditions prévalant dans les biofiltres. Cette dernière constatation n'est pas à négliger car d'après un dénombrement des micro-organismes hétérotrophes totaux (NPP), la tourbe granulaire contient 10^7 - 10^8 cell./g sec (par rapport à 10^2 - 10^3 cell./mL dans l'eau souterraine). L'importante concentration cellulaire présente dans le milieu filtrant peut s'avérer intéressante lors du traitement d'une eau ne contenant pas ou peu de biomasse.

Des essais hydrostatiques, réalisés sur des échantillons de tourbe granulaire, ont montré d'autres effets du temps sur les caractéristiques des biofiltres. D'abord, un lit de tourbe

granulaire neuve est composé de 7 % de solide, 41 % de liquide dynamique et 47 % de liquide statique. Après 22 semaines passées dans un biofiltre, les fractions volumiques de liquides statique et dynamique deviennent 66 et 19 % respectivement, alors que la fraction de solide reste inchangée.

Le comportement hydrodynamique de l'eau dans les biofiltres opérés à $10 \text{ m}^3/\text{m}^2.\text{j}$ (1,8 L/min) a aussi été étudié à l'aide d'essais de traçage réalisés au départ et après 19 semaines de biofiltration. Initialement, les deux configurations de biofiltres présentaient des écoulements de type piston avec 34 à 41 % de volumes morts dus à l'importante porosité du milieu filtrant. Les temps de résidence moyens étaient alors de 42 minutes en percolation et de 48 minutes dans le biofiltre saturé à courant ascendant. Après 19 semaines, le comportement hydrodynamique des biofiltres avait beaucoup changé. Une modélisation de la réponse de DTS à l'aide d'un modèle multiparamétrique a montré une augmentation importante des volumes morts et des chemins préférentiels dans les biofiltres en percolation (68 % de zones mortes), à cause de l'effritement de la tourbe granulaire et de l'augmentation de la proportion de liquide statique/dynamique notée lors des essais hydrostatiques. Des problèmes de distribution de liquide ont aussi favorisé la formation de chemins préférentiels. Du côté des biofiltres saturés, une augmentation importante du mélange et la formation de chemins préférentiels parallèles ont été observées; 71 % du volume de biofiltre était en écoulement mélangé. Ce comportement a été associé à la présence des plaques perforées.

Suite aux essais réalisés, il a été conclu que la tourbe granulaire est un milieu intéressant pour la biofiltration de l'eau souterraine contaminée par les produits pétroliers. Les biofiltres pilotes tels que testés n'ont pas permis de conclure quant à l'efficacité du système de traitement des BTEX en continu. Cependant, à partir des résultats obtenus des suivis microbiologique et hydrodynamique, des recommandations sur les modifications à effectuer aux configurations des biofiltres ont été formulées.

ABSTRACT

The study by Forget (1997) bearing upon « The Characterization of a New Filtering Medium for the Biofiltration of BTEX in Ground Water » had shown some interesting results regarding the use of granular peat moss for treating water contaminated by toluene and benzene. Following this demonstration, an *in situ* biofiltration concept was envisaged. Such was the object of the present project: to develop and test an experimental biofilter that could eventually be integrated into a larger system of site restoration.

First of all, preliminary characterization was made to ensure that recent changes in the manufacturing process of granular peat moss had not disturbed the microbiological and mechanical properties of the medium. As it came out, on the one hand, biological activity was unchanged, and on the other, both the porosity and hydraulic conductivity of the medium were slightly increased (90.2% and 10^{-1} cm/s, respectively).

Following this, two 200-L pilot scale biofilters were designed: one percolation unit, and one saturated up flow unit. As they both showed favorable and limiting features, the two designs were constructed in duplicate for the on-site setup.

From July to December 1998, the pilot scale biofilters were in operation on petroleum company site having BTEX-contaminated groundwater. Samples and measurements were taken at regular intervals at the inflow and outflow of the biofilters; unfortunately, technical problems and unfavorable operating conditions prevented all but a brief period of biodegradation from being observed. The composition of the groundwater itself, and the difficulty of maintaining sufficient levels of dissolved oxygen in the inflow account for most of these problems. As the water to be treated came from the very heart of the contamination plume, it contained high BTEX concentrations (around 10 000 µg/L), and

abnormally high level of iron(II) (35 mg/L), this last caused by the anoxic conditions prevailing in the aquifer. To ensure the aerobic degradation of the pollutants, the water had to be aerated in a holding tank, which caused, in turn, a massive proliferation of ferric oxides and biomass. These deposited everywhere in the system, plugging the air-diffusion and liquid-distribution apparatus, and rendering some operating parameters such as flow rates and dissolved oxygen concentrations extremely unstable.

Monitoring of microbial activity inside the granular peat moss was effected by means of microcosms after 0, 8, 14, and 22 weeks of operation. These experiments showed an adaptation of the microbial population in the peat moss over time, as evidenced by the disappearance of the lag phase of 7 and 17 days previously observed for the mineralization of toluene and *p*-xylene. So it was that between the 8th and 14th weeks of operation the maximum toluene mineralization rate went from 0.3 to 0.47 mg/L.d, and the final percentage, from 54 ± 3 to 68 ± 5 %. Other trials in microcosms have shown that after 14 weeks within a biofilter the granular peat moss microorganisms are able to mineralize all BTEX compounds, without a lag phase, and at similar rates (0.44 mg/L.d on average). During these trials, $70 \pm 10\%$ mineralization was obtained after 30 days, for all BTEX.

Analysis of the peat moss for nutrients also explained why adding a phosphate buffer to the groundwater in the microcosms favored the toluene mineralization. It was seen that fresh granular peat moss does not contain orthophosphates in detectable amounts, and has 35 mg/kg nitrogen as nitrate-nitrite. These last, however, are quickly washed away (in less than two weeks) under continuous operation. So it is that in the presence of a phosphate buffer (non-limiting environmental conditions) maximum rates and percentages of mineralization were obtained (0.73 mg/L.d, and 80.9% for toluene, under microcosm conditions).

Lastly, the contribution of the various bacterial populations on the contaminants mineralization was determined through selective sterilizations in microcosms trials involving *p*-xylene. These experiments showed that, even though contaminated groundwater contained more BTEX-adapted microorganisms than did new granular peat moss initially (showed by a null lag phase compared to 17 days), the presence of the peat moss as a bacterial support was essential to the mineralization process. This was evidenced by a trial using glass beads instead of peat moss, where toluene mineralization did not go beyond 7 % after 35 days. Otherwise, indigenous granulated peat moss microorganisms adapted to conditions prevailing in the biofilters. Moreover, a total heterotrophic bacterial counts (MPN) on peat moss samples indicated high bacterial concentrations (10^7 - 10^8 cell./g dry as opposed to 10^2 - 10^3 cell./mL in groundwater). From these observations, the filtering medium appears to be interesting for the treatment of groundwater with low or no biomass content.

Hydrostatic tests on granular peat moss samples have shown other effects of the aging on the properties of the biofilters. At first, a bed of new granular peat moss comprises 7% of solids, 41% of dynamic liquid, and 47% of static liquid. After 22 weeks within a biofilter, the volumetric fractions occupied by static and dynamic liquids become 66 and 19% respectively, while the share of solids remains unchanged.

The hydrodynamic behavior of the water within the biofilters also was studied using a tracer experiment at the start, and after 19 weeks of biofiltration. Initially, liquid distribution in both biofilters configurations was of the plug flow type, with 34-41% dead volumes, favored by the high porosity of the filtering medium. At that time, the average residence times were 42 minutes in the percolation mode, and 48 minutes in the saturated up flow mode. After 19 weeks, the hydrodynamic behavior of the biofilters was much changed. Modelization of the RTD response using a multiparameter model has shown an important increase in stagnant volumes, and the appearance of channeling

within the percolation filters (68% inert zones), attributable to the moss crumbling, and to the growing proportion of static over dynamic liquid evidenced in the hydrostatic trials. Problems in liquid distribution also contributed to the formation channeling. As for the saturated filters, considerable mixing and parallel paths were observed. It was determined that 71% of the biofilter volume was mixed flow. This behavior has been associated with the presence of perforated plates on top of the filtering mediums.

Following these tests, the conclusion was reached that granular peat moss, as a filtering medium for groundwater contaminated by petroleum products, warrants continued interest and research. Although the experimental biofilters, under the particular on-site testing conditions, did not allow conclusions as to the biodegradation of BTEX over time, other results, from the microbiological and hydrodynamic aspects of the research, have lead to recommending modifications to the biofilter configuration in the event of a further study.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE	IV
REMERCIEMENTS	V
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT.....	X
TABLE DES MATIÈRES	XIV
LISTE DES TABLEAUX.....	XX
LISTE DES FIGURES	XXII
LISTE DES ANNEXES.....	XXV
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS	XXVIII
LISTE DES NOTATIONS ET SYMBOLES	XXX
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	1
1.1 PROBLÉMATIQUE.....	1
1.2 ÉTUDE ANTÉRIEURE	1
1.3 CONCEPT VISÉ	3
1.4 HYPOTHÈSE ET OBJECTIFS DE RECHERCHE.....	5
1.4.1 Caractérisation initiale de la tourbe granulaire	6

1.4.2	Essais de biofiltration sur le terrain.....	6
1.5	CHOIX DU SITE	7

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE.....9

2.1	LES EAUX SOUTERRAINES AU QUÉBEC	9
2.1.1	Caractéristiques et importance des nappes aquifères au Québec	9
2.1.1.1	<i>L'utilisation de l'eau souterraine</i>	10
2.1.1.2	<i>La qualité des eaux souterraines</i>	10
2.1.2	La contamination des eaux souterraines.....	12
2.1.3	Législation et décontamination	12
2.2	LA CONTAMINATION PAR LES PRODUITS PÉTROLIERS.....	14
2.2.1	La situation des industries pétrolières	15
2.3	LES BTEX	15
2.3.1	Description et propriétés	16
2.3.2	Production et utilisation	19
2.3.3	Sources naturelles et rejets	19
2.3.4	Devenir et concentrations dans l'environnement	20
2.4	BIODÉGRADATION DES BTEX.....	22
2.4.1	Facteurs influençant la biodégradation des BTEX dans les eaux souterraines	22
2.4.1.1	<i>Accepteurs d'électron</i>	23
2.4.1.2	<i>Nutriments</i>	27
2.4.1.3	<i>Conditions environnementales</i>	28
2.4.2	Voies métaboliques empruntées.....	29
2.4.3	Cinétique de biodégradation	33
2.4.4	Interactions entre les BTEX	34
2.5	TECHNOLOGIES DE TRAITEMENT DES EAUX SOUTERRAINES CONTAMINÉES PAR LES BTEX	35

2.5.1	Le traitement <i>ex situ</i> ou le pompage et traitement.....	36
2.5.1.1	<i>Limites du pompage et traitement conventionnel.....</i>	36
2.5.2	Le traitement <i>in situ</i>	38
2.5.2.1	<i>Biostimulation in situ</i>	39
2.5.2.2	<i>Murs réactifs et « entonnoir-barrière »</i>	40
2.6	BIOFILTRATION APPLIQUÉE AUX EAUX SOUTERRAINES	42
2.6.1	La tourbe en tant que milieu filtrant.....	43
CHAPITRE 3 MATÉRIEL ET MÉTHODES		45
3.1	CARACTÉRISATION INITIALE DE LA TOURBE GRANULAIRE	45
3.1.1	Description de la tourbe granulaire	45
3.1.2	Évaluation préliminaire de l'activité biologique en microcosmes	46
3.1.2.1	<i>Essais de minéralisation</i>	48
3.1.2.2	<i>Analyse des courbes de minéralisation.....</i>	50
3.1.3	Évaluation des propriétés physiques	52
3.1.3.1	<i>Densité relative (G_s).....</i>	52
3.1.3.2	<i>Conductivité hydraulique (K).....</i>	52
3.1.3.3	<i>Porosité (n) et masse volumique (ρ).....</i>	53
3.2	CONCEPTION DES BIOFILTRES PILOTES.....	54
3.2.1	Critères de conception.....	54
3.2.1.1	<i>Critères physiques du milieu filtrant.....</i>	55
3.2.1.2	<i>Critères hydrodynamiques</i>	55
3.2.1.3	<i>Critères de traitement</i>	56
3.2.2	Configurations choisies.....	56
3.2.2.1	<i>Écoulement en percolation et choix du type de distribution.....</i>	57
3.2.2.2	<i>Écoulement saturé ascendant.....</i>	59
3.2.3	Description des biofiltres pilotes.....	60
3.2.3.1	<i>Biofiltre en percolation</i>	61

4.2.1	Modifications apportées aux biofiltres.....	87
4.2.1.1	<i>Biofiltres en percolation.....</i>	87
4.2.1.2	<i>Biofiltres saturés à courant ascendant.....</i>	88
4.2.2	Problèmes techniques.....	89
4.2.2.1	<i>Maintien de l'oxygène dissous.....</i>	89
4.2.2.2	<i>Alimentation constante des biofiltres.....</i>	91
4.2.2.3	<i>Limites d'opération du système de distribution liquide en percolation.....</i>	92
4.2.3	Biodégradation des BTEX en continu.....	92
4.2.3.1	<i>Suivi des paramètres opératoires.....</i>	92
4.2.3.2	<i>Traitement des COV.....</i>	98
4.2.3.3	<i>Suivi de l'enlèvement des BTEX.....</i>	98
4.3	ESSAIS DE TERRAIN : SUIVI DE L'ACTIVITÉ BIOLOGIQUE	102
4.3.1	Caractérisation de l'activité microbienne de minéralisation dans le temps.....	102
4.3.1.1	<i>Présence de micro-organismes adaptés.....</i>	105
4.3.1.2	<i>Temps d'acclimatation des micro-organismes.....</i>	107
4.3.1.3	<i>Présence du tampon phosphate.....</i>	107
4.3.1.4	<i>Présence d'oxyde de fer et quantité de nutriments disponible.....</i>	108
4.3.2	Minéralisation de tous les composés BTEX	112
4.3.3	Apport des diverses populations bactériennes sur le traitement	115
4.3.4	Dénombrement des micro-organismes hétérotrophes totaux (NPP).....	119
4.4	ESSAIS DE TERRAIN : SUIVI DU COMPORTEMENT HYDRODYNAMIQUE	120
4.4.1	Caractérisation hydrostatique dans le temps	121
4.4.2	Caractérisation hydrodynamique des biofiltres.....	123
4.4.2.1	<i>Moments des courbes de DTS.....</i>	123
4.4.2.2	<i>Caractérisation de l'écoulement en percolation.....</i>	124
4.4.2.3	<i>Caractérisation de l'écoulement saturé ascendant.....</i>	130

CHAPITRE 5 DISCUSSION GÉNÉRALE.....	134
5.1 CARACTÉRISTIQUES INITIALES DE LA TOURBE GRANULAIRE	134
5.2 CONDITIONS DE TERRAIN DIFFICILES ET PROBLÈMES TECHNIQUES	136
5.2.1 Apport en oxygène	137
5.2.2 Taux d'enlèvement des BTEX	138
5.3 EFFETS DU TEMPS SUR LES CARACTÉRISTIQUES DES BIOFILTRES PILOTES	139
5.3.1 Amélioration de l'activité biologique	140
5.3.2 Support microbien	141
5.3.3 Apport en nutriments.....	142
5.3.4 Détérioration des propriétés hydrodynamiques.....	143
5.4 IMPLICATIONS SUR LA TECHNOLOGIE.....	145
 CHAPITRE 6 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS.....	 148
6.1 CONCLUSIONS GÉNÉRALES	148
6.2 RECOMMANDATIONS.....	150
 RÉFÉRENCES.....	 155

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 : Composition physico-chimique des eaux souterraines du Québec (Simard et Des Rosiers, 1980)	11
Tableau 2.2: Propriétés chimiques des BTEX.....	17
Tableau 2.3 : Paramètres de volatilisation et d'adsorption des BTEX	18
Tableau 2.4 : Caractéristiques générales des accepteurs d'électron communément retrouvés dans les eaux souterraines (ES), présentés dans leur séquence d'utilisation	24
Tableau 2.5 : Réactions de minéralisation aérobie et anaérobies des BTEX	25
Tableau 3.1 : Caractéristiques physiques et chimiques de la tourbe de sphaigne employée dans la fabrication de la tourbe granulaire	46
Tableau 3.2 : Composition de l'eau souterraine synthétique	47
Tableau 3.3 : Critères de conception d'un nouveau système de biofiltration <i>in situ</i>	55
Tableau 3.4 : Avantages et inconvénients des deux configurations de biofiltres	57
Tableau 3.5 : Composition de l'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières	64
Tableau 3.6 : Plan de suivi des essais de terrain.....	67
Tableau 4.1 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.1	83
Tableau 4.2 : Propriétés physiques de la tourbe granulaire	85
Tableau 4.3 : Variation de la température de l'eau souterraine au cours des essais de terrain	93
Tableau 4.4 : Comparaison et analyse méthodiques des courbes de la Figure 4.6, présentées en ordre décroissant de minéralisation du ¹⁴ C-toluène	104
Tableau 4.5 : Analyses chimiques des nutriments contenus dans la tourbe granulaire	111
Tableau 4.6 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.8	114

Tableau 4.7 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.9	117
Tableau 4.8 : Résultats des comptes par la méthode du NPP.....	119
Tableau 4.9 : Résultats des essais hydrostatiques.....	121
Tableau 4.10 : Temps de résidence (τ) et variances (σ^2) des courbes de DTS obtenues à 10 m ³ /m ² .j	124

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Illustration du concept visé de biofiltration <i>in situ</i> , vue de plan.....	4
Figure 1.2 : Illustration du concept visé de biofiltration <i>in situ</i> , vue en coupe.	4
Figure 2.1 : Structure chimique des composés BTEX.	17
Figure 2.2 : Devenir des BTEX dans l'environnement.	21
Figure 2.3 : Illustration schématisée de la répartition des accepteurs d'électron dans un panache d'eau souterraine contaminée.....	26
Figure 2.4 : Voies de biodégradation du benzène en conditions aérobies (I) <i>métabolisme</i> , (II) <i>ortho</i> -fission (Gibson et Subramanian, 1984).	30
Figure 2.5 : Voies de biodégradation aérobie du toluène (Smith, 1990).	31
Figure 2.6 : Attaque oxydative d'un groupement alkyl; voie possible pour la biodégradation aérobie du <i>para</i> - et du <i>métabolisme</i> -xylène (Smith, 1990).....	32
Figure 2.7 : Voie de dégradation aérobie de l' <i>ortho</i> -xylène (Smith, 1990).	32
Figure 2.8 : Schématisation d'un mur réactif (Starr et Cherry, 1994).	41
Figure 3.1 : Microcosme servant aux tests de minéralisation.	49
Figure 3.2 : Courbe typique de minéralisation issue d'un essai en microcosme.....	50
Figure 3.3 : Schéma des biofiltres pilotes au début des essais de terrain.....	61
Figure 3.4 : Schéma du montage expérimental de terrain.....	66
Figure 3.5 : Schéma du montage expérimental pour réaliser les essais de traçage en laboratoire.....	79
Figure 4.1 : Minéralisation aérobie du ^{14}C -toluène à 10 °C par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire dans de l'eau souterraine synthétique tamponnée, sous différentes conditions d'aération.	82
Figure 4.2 : Variation de l'oxygène dissous dans l'eau souterraine à l'entrée et à la sortie des biofiltres.	94

Figure 4.3 : Variation des débits alimentés aux biofiltres dans le temps pour les biofiltres en percolation.	96
Figure 4.4 : Variation des débits alimentés aux biofiltres dans le temps pour les biofiltres saturés à courant ascendant.	96
Figure 4.5 : Variation des taux de charge organique à l'entrée et à la sortie des quatre biofiltres pilotes dans le temps, a) percolation (P1); b) percolation (P2); c) saturé (S1); d) saturé (S2).	99
Figure 4.6 : Minéralisation du ^{14}C -toluène à 10°C en conditions aérobies par la tourbe granulaire dans de l'eau souterraine.	103
Figure 4.7 : Minéralisation du ^{14}C -toluène à 10°C en conditions aérobies par de la tourbe du terrain (âgée de 8 semaines) dans de l'eau souterraine du terrain tamponnée.	110
Figure 4.8 : Minéralisation de tous les composés BTEX radiomarqués à 10°C en conditions aérobies, en présence de tourbe granulaire acclimatée (14 semaines) et d'eau souterraine du terrain, non tamponnée.	113
Figure 4.9 : Comparaison de l'activité de minéralisation du ^{14}C - <i>p</i> -xylène à 10 °C, en conditions aérobies, par les micro-organismes de la tourbe granulaire et/ou de l'eau souterraine.	116
Figure 4.10 : Effet du vieillissement du milieu filtrant sur la DTS dans les biofiltres en percolation.	125
Figure 4.11 : Schématisation de l'écoulement de l'eau dans les biofiltres en percolation.	128
Figure 4.12 : Modélisation de la distribution des temps de séjour dans le biofiltre P1 après 19 semaines d'opération.	129
Figure 4.13 : Effet du vieillissement du milieu filtrant sur la DTS dans les biofiltres saturés à courant ascendant.	130
Figure 4.14 : Modélisation de la distribution des temps de séjour dans le biofiltre S1 après 19 semaines d'opération.	132

Figure 6.1 : Schéma de biofiltres à « plateaux ». a) écoulement en percolation:	
b) écoulement saturé ascendant.....	152
Figure 6.2 : Schéma d'une galerie d'infiltration à « plateaux ».	153

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A : NORMES ET CRITÈRES	166
A.1 CRITÈRES GÉNÉRIQUES APPLICABLES AUX CAS DE CONTAMINATION DES EAUX SOUTERRAINES (MEF, 1998).....	167
ANNEXE B : COMPOSITION DE L'ESSENCE ORDINAIRE ET TEMPÉRÉE	170
Tableau B.1 : Exemple de composition d'une essence ordinaire (Cookson, 1995).	171
Tableau B.2 : Principaux constituants d'une essence ordinaire (Cookson, 1995) ...	172
Tableau B.3 : Exemple de composition d'une essence météorisée (Cookson, 1995)	173
Tableau B.4 : Principaux constituants d'une essence météorisée (Cookson, 1995)	174
ANNEXE C : PHOTOGRAPHIES	175
TOURBE GRANULAIRE NEUVE.....	176
PETIT BIOFILTRE À COV, FIXÉ AU COUVERCLE D'UNE UNITÉ PILOTE.	176
VUE D'ENSEMBLE DU SITE OÙ ONT EU LIEU LES ESSAIS DE TERRAIN.	177
PUITS DE CAPTAGE.	177
INSTALLATION DES BIOFILTRES PILOTES SUR LE TERRAIN.	178
BASSIN DE RÉTENTION ET POMPES PÉRISTALTQUES SERVANT À ALIMENTER LES BIOFILTRES PILOTES.	178
PROBLÈMES DE DISTRIBUTION AVEC LES PLAQUES PERFORÉES EN PERCOLATION.	179
COLMATAGE DES DISTRIBUTEURS EN « H » ET DU MILIEU FILTRANT PAR L'OXYDE FERRIQUE.	180
TOURBE GRANULAIRE ÉMIETTÉE ET COMPACTÉE.	180
TOURBE GRANULAIRE RECOUVERTE D'OXYDE DE FER.....	181

ANNEXE D : PROTOCOLES EXPÉRIMENTAUX (PE) ET PROTOCOLES STANDARDS D'OPÉRATION (PSO)	182
D.1 PE-19A : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DU ^{14}C -TOLUÈNE SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR DE LA TOURBE GRANULAIRE	183
D.2 PE-19C : CARACTÉRISATION HYDROSATIQUE ET HYDRODYNAMIQUE DE DEUX CONFIGURATIONS DE BIOFILTRE PILOTE À BASE DE TOURBE GRANULAIRE (EN PERCOLATION ET EN ÉCOULEMENT ASCENDANT)	189
D.3 PE-19G : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DU ^{14}C -TOLUÈNE SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR LA TOURBE GRANULAIRE NEUVE ET USAGÉE, AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES	197
D.4 PE-19H : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DE TOUS LES BTEX RADIOMARQUÉS SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR DE LA TOURBE GRANULAIRE PROVENANT DES BIOFILTRES DU TERRAIN (ÂGÉE DE 14 SEMAINES), AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES	202
D.5 PE-19I : CARACTÉRISATION HYDRODYNAMIQUE DE 4 BIOFILTRES PILOTES À BASE DE TOURBE GRANULAIRE APRÈS PLUSIEURS MOIS DE FONCTIONNEMENT SUR UN SITE DE TROIS-RIVIÈRES	206
D.6 PE-19J : DÉTERMINATION DE LA SOURCE DE MICRO-ORGANISMES RESPONSABLES DE LA MINÉRALISATION DU ^{14}C -TOLUÈNE : COMPTES MICROBIENS ET ESSAIS DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DE 500 mL PAR LA TOURBE GRANULAIRE NEUVE ET USAGÉE ET PAR L'EAU SOUTERRAINE DE TROIS-RIVIÈRES	211
D.7 PSO-A10 : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES	216
D.8 PSO-A12 : DÉNOMBREMENT TOTAL DE MICRO-ORGANISMES HÉTÉROTROPHES PAR LA MÉTHODE DU NOMBRE LE PLUS PROBABLE (NPP)	225
ANNEXE E : CARTOGRAPHIE DU SITE	232
E.1 PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE DE CRUE, 6 MAI 1997	233
E.2 PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE HIVERNALE, 5 JANVIER 1998	234

E.3	PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE AUTOMNALE, 31 OCTOBRE 1998	235
E.4	ÉPAISSEURS MOYENNES D'HYDROCARBURES (1998).....	236
E.5	ÉVOLUTION DES ÉPAISSEURS D'HYDROCARBURES EN PHASE LIBRE	237
ANNEXE F : CALCULS		238
F.1	CALCUL DU NOMBRE DE TROUS SUR LA PLAQUE PERFORÉE.....	239
F.2	INCERTITUDES SUR LES RÉTENTIONS (ESSAIS HYDROSTATIQUES)	241
F.3	CALCUL DES PERTES PAR VOLATILISATION DANS LES BIOFILTRES	242
F.4	CALCUL DE LA DEMANDE THÉORIQUE EN OXYGÈNE (DTO) DANS L'EAU SOUTERRAINE ET DE LA CAPACITÉ MAXIMALE D'AÉRATION DU DIFFUSEUR	244
ANNEXE G : RÉSULTATS D'ANALYSES DES COMPOSÉS BTEX SUR LE TERRAIN		247
G.1	MESURES DANS L'EAU À L'ENTRÉE DES BIOFILTRES.....	248
G.2	MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE P1	249
G.3	MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE P2.....	250
G.4	MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE S1.....	251
G.5	MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE S2.....	252

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

BTEX	Benzène, Toluène, Éthylbenzène et Xylènes
CPM	Coups par minute (lus par le compteur à scintillation)
COT	Carbone organique total
COV	Composés organiques volatils
C.U.M.	Communauté urbaine de Montréal
DBO	Demande biologique en oxygène
DI	Diamètre interne
DPM	Désintégrations par minute (correspondant à $2,2 \times 10^7$ mCi)
DTO	Demande théorique en oxygène
DTS	Distribution des temps de séjour
ES	Eau souterraine
ESA	Eau souterraine aérée (provenant du bassin d'aération)
ESS	Eau souterraine synthétique
EST	Eau souterraine du terrain
GC/MS	Chromatographie en phase gazeuse/spectromètre de masse
LNAPL	« Light Non Aqueous Phase Liquid »
MEF	Ministère de l'Environnement et de la Faune
MES	Matières en suspension
NPP	Nombre le plus probable
OD	Oxygène dissous
ORC®	Composé à relâchement lent d'oxygène (de l'anglais « Oxygen Releasing Compound »)

P1, P2	Biofiltres en percolation n° 1, n° 2 (duplicatas)
POR	Potentiel d'oxydoréduction
PPCES	Projet de politique de protection et de conservation des eaux souterraines
PPSRTC	Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés
P-T	Pompage et traitement (ou, en anglais, « Pump-and-Treat »)
PVC	Chlorure de polyvinyle (de l'anglais « PolyVinyl Chloride »)
S1, S2	Biofiltres saturés (à courant ascendant) n° 1, n° 2 (duplicatas)
TCH	Taux de charge hydraulique
TN	Tourbe neuve
T x sem	Tourbe ayant passé x semaines dans les biofiltres du terrain
U.S. EPA	Agence américaine de protection de l'environnement (de l'anglais « United States Environmental Protection Agency »)

LISTE DES NOTATIONS ET SYMBOLES

C	Concentration de substrat	(mg substrat/L)
E_{θ}	Fonction adimensionnelle de DTS ($E(t).\tau$)	
$E(t)$	Fonction de DTS	(min ⁻¹)
$G_s (20^{\circ}/4^{\circ})$	Densité relative (en anglais « specific gravity »), densité d'un composé à 20°C par rapport à celle de l'eau à 4°C	
H	Coefficient de la loi d'Henry	(kPa.m ³ /mol)
j	Jour	
K	Conductivité hydraulique	(cm/s)
K_s	Coefficient de mi-saturation (Monod)	(mg substrat/L)
k	Taux maximal d'utilisation du substrat	(mg substrat/mg cell..j)
k_{ow}	Coefficient de partition octanol-eau	
k_{oc}	Coefficient de partition matière organique-eau	
M_i	Masse de l'élément i	(mg, g, kg)
MM	Masse molaire	(g/mole)
n	Porosité	(%)
p^{sat}	Tension de vapeur	(kPa)
sem	Semaine	
S_w	Solubilité dans l'eau	(mg/L)
t	Temps écoulé depuis l'injection du traceur (DTS)	(min)
t	Temps (Monod)	(j)
T_e	Température d'ébullition	(°C)
T_f	Température de fusion	(°C)

V_i	Volume de l'élément i	(m ³ , mL, cm ³)
V_d	Volume mort (modèle multiparamétrique, DTS)	(L)
V_m	Volume de mélange (modèle multiparamétrique, DTS)	(L)
V_p	Volume en écoulement piston (modèle multiparamétrique, DTS)	(L)
X	Concentration de biomasse	(mg cell./L)
cell.	Cellules	
ε_{Ld}	Rétention ou fraction volumique de liquide dynamique	
ε_{Ls}	Rétention ou fraction volumique de liquide statique	
ε_s	Rétention ou fraction volumique solide	
θ	Temps adimensionnel, t/τ (DTS)	
ρ	Densité vrac	(kg/m ³ , g/cm ³)
σ^2	Variance (DTS)	(min ²)
τ	Temps de résidence (DTS)	(min)

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

1.1 PROBLÉMATIQUE

La contamination des eaux souterraines par les composés de l'essence est un problème environnemental maintenant largement reconnu. Au Québec en 1995, on estimait à 50 000 le nombre de réservoirs souterrains non protégés contre la corrosion. De ceux-ci, on considérait que 35 % laisseraient s'échapper des hydrocarbures (De Smet, 1995). Depuis, les industries pétrolières et les stations-service ont dû (ou devront le faire avant l'an 2001) remplacer tous les réservoirs souterrains en acier non protégé contre la corrosion (Gouvernement du Québec, 1991).

À cause de leur faible coefficient d'adsorption au sol, les BTEX (benzène, toluène, éthylbenzène et xylènes), un groupe de composés toxiques retrouvés dans l'essence, sont facilement lavés par les eaux gravitaires et se retrouvent rapidement dans les nappes aquifères. Aussi, pour limiter l'étalement de la contamination par ces produits, il est important de confiner et de traiter l'eau souterraine de manière appropriée.

1.2 ÉTUDE ANTÉRIEURE

La présente étude fait suite au projet de Dominique Forget réalisé à la Chaire industrielle CRSNG en bioprocédés d'assainissement des sites de l'École Polytechnique de Montréal entre 1995 et 1997. Ce projet, portant sur la « Caractérisation d'un nouveau milieu filtrant pour la biofiltration *in situ* des BTEX

dans les eaux souterraines », avait pour premier objectif de comparer différents milieux filtrants afin d'identifier le plus avantageux pour une biofiltration *in situ* des BTEX. Le second objectif était de concevoir un biofiltre et d'en évaluer l'efficacité de traitement à l'échelle de laboratoire.

Les résultats obtenus lors de ces essais ont été très concluants. D'abord, quatre milieux filtrants ont été testés : la vermiculiteensemencée, un géotextileensemencé, un milieu organique et la tourbe granulaire. Parmi ceux-ci, la tourbe granulaire a été retenue à cause de ses bonnes propriétés mécaniques et microbiologiques. Voici les conclusions tirées par Forget (1997) à propos de ce milieu :

Ce milieu est caractérisé par une porosité et conductivité hydraulique élevées (80,8 % et $1,23 \cdot 10^{-2}$ cm/s respectivement). De plus, il n'est pas sujet à des problèmes de compaction ou de colmatage. Des essais en microcosmes ont également permis de démontrer qu'après une courte période d'acclimatation, les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire avaient la capacité de minéraliser le toluène (ayant été choisi pour représenter l'ensemble des composés BTEX) sous conditions aérobies et anaérobies dénitrifiantes, à 10°C et sans ajout de nutriments. Le benzène a également été démontré biodégradable sous conditions anaérobies dénitrifiantes par la microflore indigène du milieu filtrant.

Par la suite, des tests hydrauliques ont été réalisés en laboratoire sur une colonne de tourbe granulaire de 0,5 L de volume, en saturation complète et à travers laquelle passait un courant ascendant.

L'étude de la distribution des temps de séjour a démontré que le biofiltre opérait en régime piston avec dispersion axiale intermédiaire, sans zone morte ni chemin préférentiel. En effet, pour des temps de résidence allant de 4 minutes à 8 heures, des nombres de Peclet entre 24,8 et 96,8 ont été obtenus. La consommation volumétrique d'oxygène dissous dans le filtre a été mesurée en absence de polluant (sans toluène) et une valeur de 0,5 mg/L.h a été obtenue. Cette faible consommation d'oxygène dissous signifie que les sources de carbone propres à la tourbe granulaire ne sont pas facilement biodégradables, ce qui diminue le risque de développement de zones anaérobies au sein du filtre.

L'adsorption du toluène sur la tourbe granulaire a été étudiée et un facteur de retardement de 22,6 a été mesuré. Ce résultat élevé s'explique par la présence d'un agent liant dans la tourbe granulaire. Toutefois, il a été démontré que les sites disponibles pour l'adsorption étaient rapidement saturés et que le phénomène de biodégradation était le principal facteur responsable de l'enlèvement du toluène au sein du filtre.

La cinétique de biodégradation du toluène dans le filtre sous conditions aérobies à 10 °C et sans ajout de nutriments a été évaluée pour des concentrations moyennes de toluène à l'entrée de 1,3 et 9,4 mg/L. Des constantes cinétiques de premier ordre de $0,41 \text{ min}^{-1}$ et de $0,45 \text{ min}^{-1}$ respectivement ont été obtenues. Ces résultats permettent de conclure que la constante cinétique et l'ordre de la réaction ne sont pas fonction de la concentration de contaminant à dégrader. Enfin, en conditions anaérobies dénitrifiantes la constante cinétique de dégradation du toluène a été évaluée à $0,01 \text{ min}^{-1}$.

Les propriétés montrées par l'étude de Forget (1997) en laboratoire rendaient prometteuse l'utilisation de la tourbe granulaire pour la biofiltration de l'eau souterraine contaminées par les composés de l'essence. Face à ces résultats intéressants, nous avons développé un nouveau concept de biofiltration *in situ* des eaux souterraines contaminées par les BTEX.

1.3 CONCEPT VISÉ

Destiné à apporter une solution simple et économique au problème des eaux souterraines contaminées par les produits pétrolier tels les BTEX, ce concept de biofiltration *in situ* consiste à installer une zone de biofiltration à base de tourbe granulaire et des puits de captage (Figure 1.1 et Figure 1.2). Les biofiltres, placés dans la zone vadose juste sous le niveau du sol, sont alimentés en eau souterraine contaminée par des puits de captage dont les cônes de dépression se croisent. Une fois l'eau traitée, elle est retournée par gravité à l'aquifère.

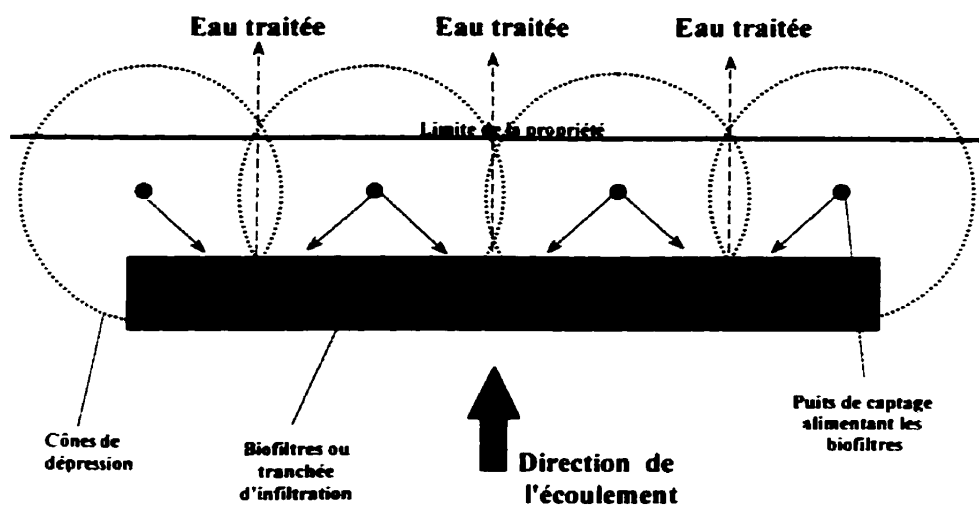


Figure 1.1 : Illustration du concept visé de biofiltration *in situ*, vue de plan.

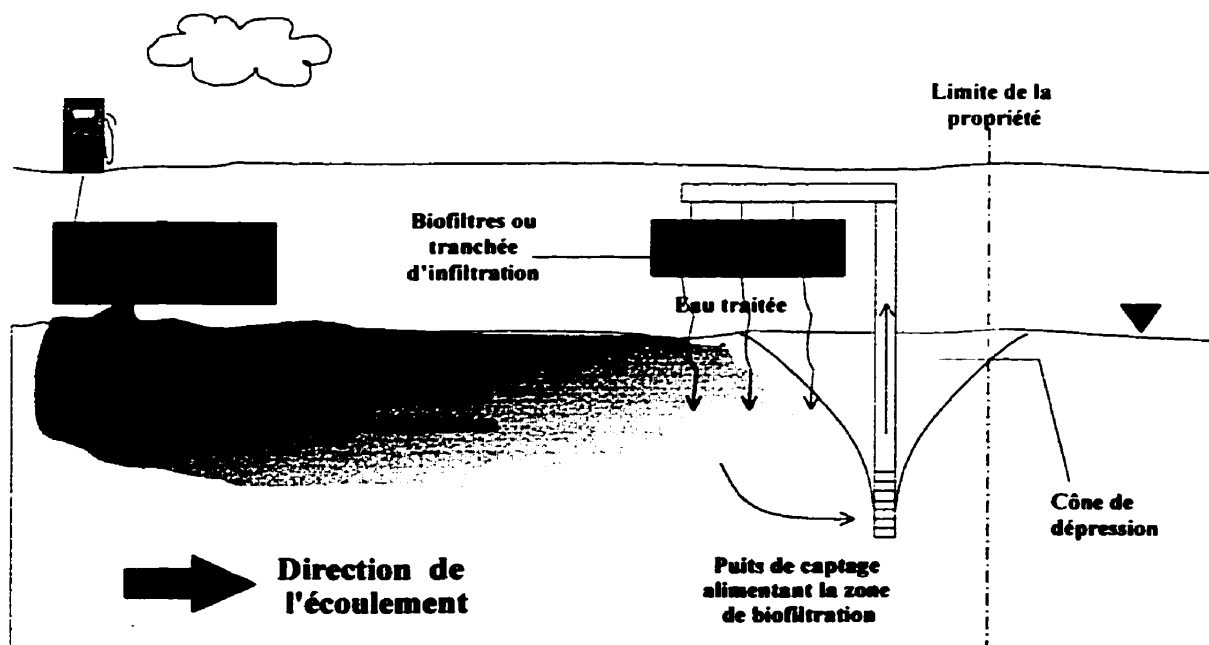


Figure 1.2 : Illustration du concept visé de biofiltration *in situ*, vue en coupe.

Le système est prévu comme mesure de mitigation ou de polissage, pour traiter la pointe du panache encore en conditions aérobies. Installé aux abords d'un terrain, il

pourrait donc servir à empêcher l'étalement de la contamination à l'extérieur des limites de la propriété ou encore prévenir la contamination d'un puits de pompage (d'eau potable par exemple).

Les avantages d'un tel système sont nombreux. Tout d'abord, il n'implique pas d'infrastructure complexe en surface et, par conséquent, il ne présente aucun impact visuel. Ensuite, il ne requiert pas d'excavation profonde pour l'installation des unités de biofiltration, ce qui réduit significativement le temps d'installation et le coût des travaux. Enfin, compte tenu des bons résultats de minéralisation du toluène et du benzène obtenus avec la tourbe granulaire lors des essais de Forget (1997), il est permis de croire qu'il s'agirait d'un système efficace pour traiter les nappes aquifères contaminées par des BTEX et que l'entretien en serait minimal.

Cependant, avant de tester un tel système de traitement, des biofiltres de dimensions pilotes devaient être développés et testés afin de confirmer le potentiel d'utilisation de la tourbe granulaire comme milieu filtrant.

1.4 HYPOTHÈSE ET OBJECTIFS DE RECHERCHE

L'hypothèse de recherche se lit comme suit : « L'utilisation de biofiltres à base de tourbe granulaire pour le traitement des eaux souterraines contaminées par les BTEX est une technologie efficace, réalisable et pouvant être incorporée dans un système de pompage et traitement empêchant la migration des contaminants ».

Aussi, pour vérifier cette hypothèse, des objectifs ont été établis. Le principal objectif du présent projet était de développer un nouveau biofiltre à base de tourbe granulaire permettant de traiter de façon simple et économique les eaux souterraines contaminées par les composés de l'essence. De façon plus spécifique, les objectifs de recherche ont

été divisés en deux : la caractérisation initiale de la tourbe granulaire et les essais de biofiltration sur le terrain.

1.4.1 Caractérisation initiale de la tourbe granulaire

Depuis les expériences réalisées en laboratoire par Forget (1997), des modifications ont été apportées à la méthode de fabrication de la tourbe granulaire chez Premier Tech. L'objectif de cette première partie a donc été de :

- S'assurer, par des essais de minéralisation en microcosme, que les changements dans le mode de production de la tourbe n'ont pas affecté l'activité microbiologique du milieu filtrant;
- Caractériser les paramètres physiques du milieu filtrant (porosité, conductivité hydraulique) et les comparer à ceux présentés par Forget (1997).

1.4.2 Essais de biofiltration sur le terrain

Les objectifs des essais pilotes, avant et pendant les essais de terrain, étaient de :

- Concevoir et construire différentes configurations de biofiltre pilotes (200 L) utilisant la tourbe granulaire comme milieu filtrant;
- Installer les biofiltres sur un site ayant des eaux souterraines contaminées par les BTEX à traiter;
- Effectuer le suivi des biofiltres et évaluer la stabilité à long terme du milieu filtrant :
 - ❖ Caractériser l'hydrodynamique au début et à la fin des essais de biofiltration;

- ❖ Caractériser l'activité microbiologique de la tourbe granulaire à différents temps de biofiltration, par des essais de minéralisation et des comptes microbiens;
- ❖ Définir les caractéristiques cinétiques d'enlèvement des BTEX des biofiltres sur le terrain;
- Effectuer des recommandations quant à la conception des unités.

1.5 CHOIX DU SITE

D'emblée, le site recherché devait avoir un aquifère contaminé par les produits pétroliers, présenter des concentrations en BTEX suffisantes pour qu'un enlèvement puisse être mesuré sans que l'erreur analytique interfère (de 5-10 mg/L au total), et être déjà muni d'un système de pompage.

Malheureusement, les propriétaires de terrains contaminés désireux de participer à un projet de recherche ne sont pas nombreux. Ainsi, après plusieurs mois d'attente pour un site correspondant aux attentes du projet, un terrain a été désigné. Il s'agissait d'un terrain fortement contaminé, où une couche d'hydrocarbures était toujours présente sur la nappe phréatique. L'eau à traiter étant puisée directement sous la phase flottante, au cœur du panache de contamination, les charges de contaminants imposées aux biofiltres étaient beaucoup plus élevées que prévues. En effet, le système de biofiltration à l'étude n'était pas prévu pour effectuer un traitement aussi intensif, mais plutôt comme mesure de mitigation ou de polissage, pour traiter la pointe du panache de contamination encore en conditions aérobies. À cause de cela, des problèmes d'apport en oxygène dissous ont été rencontrés. Enfin, des concentrations anormalement élevées en fer étaient présentes dans l'eau souterraine à traiter, ce qui s'est avéré une source

supplémentaire de problèmes, car l'aération de cette eau a eu pour effet de produire des oxydes de fer colmatant le système à l'essai.

Les restrictions financières expliquent aussi pourquoi un autre puits de captage n'a pas été creusé plus en aval de la source de contamination. Face à ces contraintes, l'essai de terrain a porté sur la biofiltration des BTEX par la tourbe granulaire en conditions pouvant être qualifiées d'« extrêmes » par rapport à l'objectif de départ.

CHAPITRE 2

REVUE DE LITTÉRATURE

2.1 LES EAUX SOUTERRAINES AU QUÉBEC

Avant d'aborder le sujet de la décontamination et des méthodes de traitement des nappes aquifères, un survol de la situation des eaux souterraines au Québec s'impose. Dans cette première partie, trois aspects seront discutés : les caractéristiques générales et l'importance de l'eau souterraine au Québec, la contamination de cette eau et enfin le cadre législatif régissant les eaux souterraines québécoises.

2.1.1 Caractéristiques et importance des nappes aquifères au Québec

Au Québec, à partir d'une profondeur qui est généralement de l'ordre du mètre, l'eau est omniprésente au sein des fractures des roches et des pores du sol. Cette eau souterraine constitue une ressource naturelle qui subit un renouvellement lent, mais continu, provenant principalement de l'eau des précipitations qui s'infiltrent dans le sol. Après avoir traversé la zone vadose, l'eau gravitaire atteint la zone saturée et entreprend un parcours plus ou moins long qui pourra durer plusieurs siècles et l'amènera à faire résurgence dans les eaux de surface (Gouvernement du Québec, 1996a; Sylvestre et Grenier, 1987).

On estime à plus de 200 milliards de mètres cubes, les réserves d'eau souterraine disponibles dans les régions habitées de la province (Sylvestre et Grenier, 1987).

2.1.1.1 L'utilisation de l'eau souterraine

Les principales utilisations de l'eau souterraine québécoise sont (Gouvernement du Québec, 1996a) :

- ✓ la consommation humaine;
- ✓ l'abreuvement du bétail;
- ✓ la pisciculture;
- ✓ l'irrigation des cultures;
- ✓ divers usages industriels (refroidissement, etc.);
- ✓ la géothermie (climatisation des bâtiments);
- ✓ le soutien à des écosystèmes naturels.

En raison de son faible coût de traitement et de sa grande qualité, plusieurs petites et moyennes collectivités choisissent l'eau souterraine comme source d'eau potable. Ainsi, pour près de 1.5 millions de personnes (soit 20 % de la population) réparties sur les neuf dixièmes du territoire habité du Québec, l'eau souterraine constitue la principale source en eau potable. En outre, la moitié d'entre elles est alimentée par des ouvrages de captage domestique, alors que l'autre est desservie par des réseaux de distribution publics (Gouvernement du Québec, 1998a).

2.1.1.2 La qualité des eaux souterraines

Parce qu'elle est moins exposée aux phénomènes pollueurs et à cause de son cycle de renouvellement beaucoup plus lent, l'eau souterraine est qualitativement plus stable que l'eau de surface (Sylvestre et Grenier, 1987). La composition physico-chimique moyenne des eaux souterraines du Québec est présentée au Tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Composition physico-chimique des eaux souterraines du Québec (Simard et Des Rosiers, 1980)

Paramètre	Valeur moyenne	Plage 95% des eaux (mg/L)	
<u>Physico-chimiques</u>			
Conductivité	445 µmho/cm	---	---
Fer	0,08 mg/L	0,002	4,2
Manganèse	0,034 mg/L	0,001	0,968
Sodium	22,1 mg/L	0,953	515
Potassium	2,11 mg/L	0,226	19,7
Chlore	14,8 mg/L	0,397	549
Silice	9,15 mg SiO ₂ /L	3,10	27,1
Fluor	0,133 mg/L	0,009	2,02
Alcalinité	153 mg CaCO ₃ /L	31,2	751
Sulfate	13,0 mg/L	1,19	143
Dureté	118 mg CaCO ₃ /L	17,0	813
<u>Nutriments</u>			
Azote total (N)	0,644 mg/L	---	---
Phosphore total (P)	0,022 mg/L	---	---

De façon générale et plus particulièrement au Québec, l'eau souterraine provenant des cent premiers mètres du sous-sol est, sauf exception, de bonne qualité et ne contient pas de composés nocifs pour la santé. De surcroît, les eaux souterraines québécoises ont une température relativement constante tout au cours de l'année, pouvant varier selon les régions de 4 °C à 10 °C (Sylvestre et Grenier, 1987). Pour ces raisons, l'eau souterraine est une ressource naturelle importante. Malheureusement, les activités humaines se déroulant sur le territoire peuvent nuire à la qualité et à la quantité de la ressource, et ainsi compromettre son exploitation ou son potentiel d'exploitation (Gouvernement du Québec, 1996a).

2.1.2 La contamination des eaux souterraines

La contamination résultant des activités humaines est généralement divisée en deux grandes classes : la contamination diffuse et la contamination ponctuelle. La contamination diffuse fait référence aux sources couvrant d'importantes superficies de territoire, comme l'épandage périodique de fertilisants et de pesticides en milieu agricole et de sels déglacants sur les routes, ainsi que les retombées atmosphériques. Une contamination des eaux souterraines est dite ponctuelle lorsque la source de polluants présente une extension géographique relativement restreinte. Un réservoir souterrain qui fuit, un champ d'épuration de fosse septique et un lieu d'enfouissement de déchets solides en constituent quelques exemples (Gorelick *et al.*, 1993; Gouvernement du Québec, 1996a).

À la différence de la contamination diffuse, la source de contamination ponctuelle pourra générer un apport de contaminants concentrés sur une faible superficie. Certaines substances se solubiliseront totalement dans l'eau souterraine pour ne créer qu'une phase miscible (solubilisée), alors que d'autres resteront partiellement immiscibles (Gouvernement du Québec, 1996a).

2.1.3 Législation et décontamination

En vertu du *Code civil du Québec*, l'eau souterraine est un bien de propriété privée relié à la propriété immobilière. « Tout propriétaire d'un fonds peut utiliser les eaux souterraines et en disposer comme bon lui semble sous réserve des limites posées par la loi et le droit commun ». Ainsi, sur le plan de la qualité, la *Loi sur la qualité de l'environnement* (Gouvernement du Québec) interdit de la contaminer. La réglementation et le contrôle des rejets de diverses activités permettent aussi de prévenir la contamination des sols et des eaux souterraines. En outre, la *Loi canadienne sur la protection de l'environnement* (Gouvernement du Canada, 1985)

prévoit des règlements pour interdire le rejet de substances toxiques (Daigneault et Paquet, 1994). Lorsque ces règlements sont respectés, ils contribuent à empêcher la contamination de l'environnement.

Par ailleurs, les gouvernements canadien et québécois se sont dotés de politiques destinées à orienter les activités de restauration des terrains contaminés. Ces politiques n'ont pas force de loi. Elles sont accompagnées de guides qui viennent en préciser les modalités d'application (Daigneault et Paquet, 1994). Ainsi, il n'existe pas, actuellement, de normes réglementaires qui indiquent jusqu'où doivent être poussés les travaux de décontamination.

La Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés du MEF (Gouvernement du Québec, 1998b) vise « la protection des sols et de l'eau souterraine en prévenant leur contamination ponctuelle ou diffuse pouvant résulter d'activités industrielles et commerciales, et la réhabilitation de terrains dégradés par ces mêmes activités ». Tout comme dans la *Politique de réhabilitation des terrains contaminés* datant de 1988, des critères génériques d'usage (i.e. normes de décontamination à atteindre en fonction de l'utilisation future du terrain) sont employés pour les sols et les eaux souterraines. Les critères d'eau souterraine, présentés à l'annexe A, ont été révisés en 1998 et continueront à être utilisés pour évaluer les impacts ou le risque que constituent un terrain et pour établir les objectifs de décontamination à atteindre en vue d'un usage donné. L'évaluation du risque spécifique et le recours à diverses mesures de gestion du risque, incluant le confinement sur place de contaminants, est aussi une option possible pour le propriétaire d'un terrain contaminé.

Il existe aussi un *Projet de politique de protection et de conservation des eaux souterraines* (PPCES) (Gouvernement du Québec, 1996b). Cette politique touche la protection, la conservation et la gestion de la ressource eau souterraine. Elle comporte un volet prévention qui vise à prévenir les contaminations, un volet intervention qui

visé à récupérer les usages perdus de l'eau souterraine suite à une contamination et, enfin, un volet conservation qui vise à prévenir les conflits d'usages (par exemple : assèchement d'un puits d'eau potable dû à l'exploitation d'une sablière), ainsi que la surexploitation et le gaspillage de la ressource.

Enfin, la *Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés* (PPSRTC) s'adresse, d'abord et avant tout, à la problématique des terrains industriels contaminés. En ce qui a trait à la récupération des usages perdus suite à une contamination des eaux souterraines les objectifs et procédures prévus à la PPCSRTC et à la PPCES sont les mêmes.

2.2 LA CONTAMINATION PAR LES PRODUITS PÉTROLIERS

Une importante source de contamination ponctuelle est reliée à la présence de réservoirs souterrains contenant des hydrocarbures. Au Québec, on en retrouve plus de 40 000 disséminés sur tout le territoire (Gouvernement du Québec, 1996a). Ainsi, parmi les déversements les plus communs de déchets dangereux, les composés de l'essence sont les premiers sur la liste. Les principaux contaminants y étant associés sont les BTEX et d'autres composés aromatiques tels que des triméthylbenzènes (Cookson, 1995).

En plus de détériorer la qualité de l'eau souterraine, les fuites d'essence provenant de réservoirs souterrains peuvent causer d'autres dangers importants. En effet, comme l'essence a une densité plus faible que celle de l'eau, elle reste en surface de la nappe phréatique et tend à s'infiltrer dans les sous-sols de bâtiments, égouts, puits et chutes, pouvant causer des vapeurs nuisibles, des explosions et des incendies (EPA, 1990).

2.2.1 La situation des industries pétrolières

Le Ministère des Ressources naturelles est responsable de l'application du *Règlement sur les produits pétroliers*. Ce règlement permet de minimiser les risques de contamination des eaux souterraines par les réservoirs souterrains de produits pétroliers, en obligeant le remplacement de tous les réservoirs non protégés, par des réservoirs résistants à la corrosion et aménagés de façon sécuritaire (Gouvernement du Québec, 1996a).

Face à la prise de conscience environnementale et au resserrement des normes et règlements gouvernementaux, les industries pétrolières procèdent de plus en plus à la restauration de leurs terrains. En raison du nombre de stations-service et autres lieux où sont entreposés ou ont été entreposés des produits pétroliers, et de l'ignorance ou de l'inconscience environnementale des décennies passées, la tâche de décontamination et de restauration n'est pas mince. Dépendant du niveau de contamination et du type de sol en place, les industries pétrolières se retrouvent parfois avec des travaux de décontamination longs et coûteux. Le type de traitement ou de restauration choisi n'y est pas pour rien.

2.3 LES BTEX

Le pétrole et les carburants pétroliers comme l'essence, les huiles à chauffage et les carburants diesel, sont des mélanges complexes de composés organiques et plus particulièrement d'hydrocarbures (Baker et Herson, 1994). L'essence, qui compte pour le carburant le plus entreposé, est une des fractions légères du pétrole ; elle contient une combinaison d'hydrocarbures aliphatiques, alicycliques et monoaromatiques ainsi que plusieurs additifs (un exemple de composition d'essence ordinaire est présenté à l'annexe B). Parmi ces composés, le benzène, l'éthylbenzène, le toluène, les xylènes

(BTEX) et les autres formes de benzène forment plus de 40 % de la composition de l'essence tempérée (Cookson, 1995).

L'intérêt porté aux BTEX dans les cas de contaminations à l'essence tient au fait que ce sont les composants qui subsistent le plus longtemps dans l'environnement et qu'ils sont relativement toxiques (Alexander, 1994; Merck Index, 1996). De plus, ils comptent parmi les composés les plus solubles et les plus mobiles de tous les produits de l'essence (Allen-King *et al.*, 1994).

2.3.1 Description et propriétés

Les propriétés physiques et chimiques des contaminants jouent un rôle de première importance dans leur transport et leur devenir dans l'environnement. Pour mieux comprendre la répartition des BTEX dans les différents milieux (eau, air, sol), les propriétés de chacun seront discutées ici.

Les BTEX (le benzène, le toluène, l'éthylbenzène et trois isomères du xylène) sont des hydrocarbures aromatiques qui ont tous en commun l'anneau benzénique avec un seul lien valent libre (Cookson, 1995). Les structures chimiques de ces composés sont illustrées à la Figure 2.1.

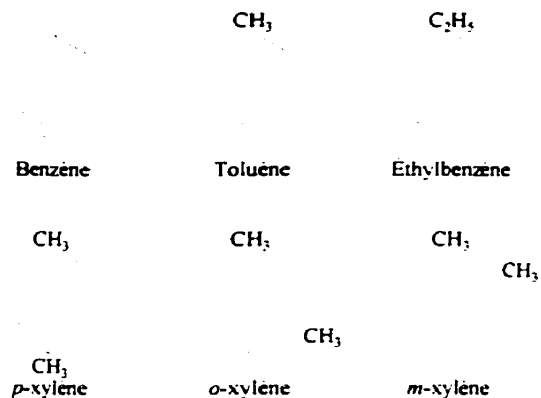


Figure 2.1 : Structure chimique des composés BTEX.

Les propriétés chimiques de chacun des BTEX ainsi que leurs paramètres de volatilisation et d'adsorption sont présentés au Tableau 2.2 et au Tableau 2.3.

Tableau 2.2: Propriétés chimiques des BTEX

PROPRIÉTÉS CHIMIQUES						
Composé	Formule	MM	$G_s^{a,b}$ (20°/4°)	S_w à 20°C ^{b,c} (mg/L)	T_f (°C) ^a	T_c (°C) ^a
Benzène	C_6H_6	78.11	0.879	1780	5.53	80.10
Toluène	C_7H_8	92.13	0.866	515	-94.99	110.62
Éthylbenzène	C_8H_{10}	106.16	0.867	152	-94.97	136.20
m-xylène	C_8H_{10}	106.16	0.864	175	-47.87	139.10
p-xylène	C_8H_{10}	106.16	0.861	198	13.26	138.35
o-xylène	C_8H_{10}	106.16	0.880	175	-25.18	144.42

^a Felder et Rousseau (1986).

^b Nyer (1996).

^c Montgomery et Welkom (1991).

Tableau 2.3 : Paramètres de volatilisation et d'adsorption des BTEX

PARAMÈTRES DE VOLATILISATION			PARAMÈTRES D'ADSORPTION AU SOL	
Composé	P^{sat} à 20°C kPa ^a	H (Henry) à 25°C kPa.m ³ /mol ^b	$\log K_{ow}$ ^a	$\log K_{oc}$ ^b
Benzène	10,13	0.555	1,56-2,15	1.69-2.00
Toluène	2,93	0.683	2,11-2,80	2.06-2.18
Éthylbenzène	0.95 ^b	0.880	3.05-3.15	1.98-2.41
<i>m</i> -xylène	0.67	0.638	3.20	3.20
<i>p</i> -xylène	0.80	0.638	3.15-3.18	2.31
<i>o</i> -xylène	0.87	0.542	2.77-3.16	2.11

Données converties en unités métriques à partir de :

^a Nyer, E.K. (1996).

^b Montgomery et Welkom (1991).

Les BTEX sont, à température ambiante, des liquides volatils incolores qui dégagent une forte odeur aromatique. De plus, ils sont inflammables et, dans certains cas, explosifs (Montgomery et Welkom, 1989).

La solubilité de ces composés dans l'eau est entre modérée et élevée (de 152 mg/l pour l'éthylbenzène à 1780 mg/l pour le benzène) et leur tension de vapeur est relativement élevée (de 0,67 à 10,13 kPa). De plus, ces composés sont caractérisés par leurs coefficients de partage octanol-eau et matière organique-eau assez faibles ($\log K_{ow}$ allant de 1,56 à 3,20 et $\log K_{oc}$ allant de 1,69 à 3,20). Ceci indique que se sont des composés solubles très volatils qui tendent peu à s'adsorber à la matière organique du sol (Alexander, 1994).

Avec des densités inférieures à celle de l'eau (G_s de 0,861 pour le *p*-xylène à 0,880 pour le *o*-xylène) les BTEX sont des composés qui flottent sur l'eau. On dit de ce type de contaminants qu'ils sont des LNAPLs (pour « Light Non Aqueous Phase Liquids »), acronyme qui désigne la phase libre de contaminant immiscible avec la phase aqueuse.

2.3.2 Production et utilisation

Bien que la grande majorité des BTEX présents dans l'essence au Canada provienne du craquage et du reformage exécutés au cours du raffinage normal, du benzène et des xylènes purifiés peuvent être ajoutés à l'essence durant le mélange. Ces composés augmentent l'indice d'octane et agissent comme antidétonants (Environnement Canada, 1993a; 1993b) .

Pour ce qui est du toluène extrait, sa principale utilisation finale au Canada est la production de benzène par le procédé d'hydrodésalkylation. Contrairement au benzène et aux xylènes, tout le toluène présent dans l'essence au Canada provient du procédé normal de raffinage du pétrole; on n'ajoute pas de toluène extrait au cours du mélange (Environnement Canada, 1992).

En plus de leur utilisation dans l'industrie pétrolière, ces composés sont très largement utilisés dans l'industrie des solvants et comme intermédiaires dans la production de produits chimiques. On retrouve ces composés dans les peintures et les vernis, les formulations de pesticides, les encres d'impression, les adhésifs, les mastics et dans certains agents de nettoyage ou d'extraction chimique (Environnement Canada, 1992). L'éthylbenzène, pour sa part, est surtout employé comme intermédiaire dans la production de styrène et d'acétophénone (Montgomery et Welkom, 1989).

2.3.3 Sources naturelles et rejets

Les BTEX sont des composés organiques retrouvés à l'état naturel dans l'environnement à de faibles concentrations. Ce sont des composants du charbon et du pétrole brut et ils sont formés par la combustion incomplète des substances organiques. L'importance des émissions et des sources naturelles est inconnue, mais on croit

qu'elles sont généralement faibles par rapport aux sources anthropiques (Environnement Canada, 1992; 1993a; 1993b).

Il peut y avoir rejet de BTEX dans l'environnement à partir de toute étape de la production, du stockage, de l'utilisation et du transport de chacun des composés purifiés, ainsi que du pétrole brut et de l'essence, à quoi il faut ajouter les émissions produites lors de leur combustion (Environnement Canada, 1993a). Mais c'est l'usage répandu des produits pétroliers et leur entreposage qui en font la principale cause de contamination des sols et des eaux souterraines (Cookson, 1995). Les BTEX peuvent pénétrer dans le sol à partir de déversements d'hydrocarbures ou d'essence, de fuites de réservoirs souterrains de stockage et par percolation à partir de sites d'élimination de déchets (Environnement Canada, 1992; 1993a; 1993b).

2.3.4 Devenir et concentrations dans l'environnement

Parmi les mécanismes qui influent sur le devenir des BTEX dans l'environnement, on note la photo-oxydation, la volatilisation, la dissolution (l'advection), l'adsorption et la biodégradation (Figure 2.2).

Comme les BTEX présentent des pressions de vapeur relativement élevées, la volatilisation est un des phénomènes importants lorsque les contaminants sont à la surface du sol ou dans l'eau. Une fois dans l'air, les BTEX se dégradent rapidement par photo-oxydation (Environnement Canada, 1993a).

À des profondeurs de sol supérieures à 10 cm, la biodégradation remplace la volatilisation en tant que principale cause d'élimination des BTEX (Environnement Canada, 1992).

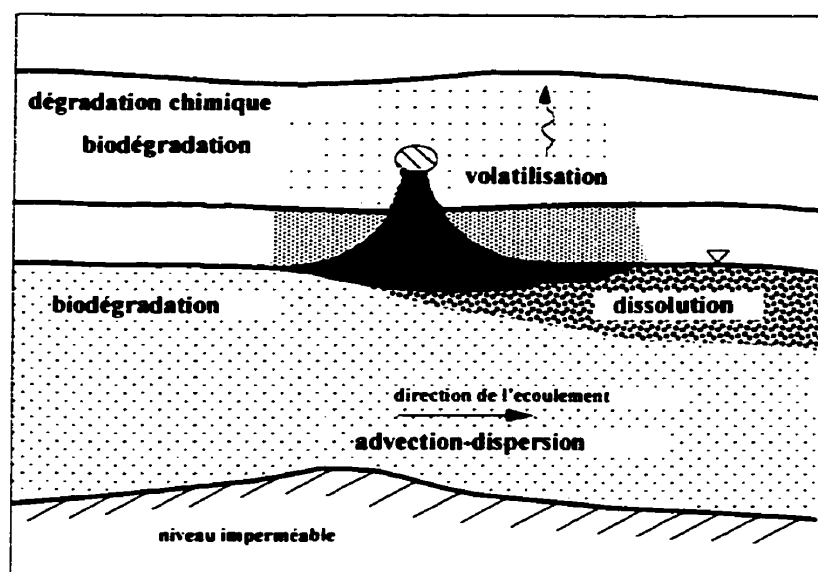


Figure 2.2 : Devenir des BTEX dans l'environnement.

Dans le sol, à cause de leurs coefficients de sorption sur du carbone organique (K_{co}) relativement faibles, les BTEX sont considérés comme étant moyennement à fortement mobiles. La présence de matière organique et d'argile peut faire obstacle à leur mouvement à travers le sol, mais comme ils sont solubles dans l'eau, ils peuvent facilement atteindre les eaux souterraines (Environnement Canada, 1993a).

Ainsi, dans la zone vadose, le transport des BTEX se fait à l'aide des précipitations qui percolent à travers le sol et se rendent jusqu'à la nappe phréatique. En raison de la faible densité des BTEX, il y a accumulation de la phase immiscible à la surface de la nappe phréatique et écoulement latéral selon la configuration de cette surface. La capacité de rétention du sol fait en sorte qu'une partie de la phase immiscible peut s'adsorber sur les particules de sol, ou être retenue partiellement dans les pores, et créer des zones à saturation résiduelle qui deviendront des sources additionnelles de pollution (Gouvernement du Québec, 1996a).

Enfin, la phase libre de produits pétroliers qui est en contact avec l'eau souterraine de l'aquifère relargue, par dissolution lente, des composés organiques dans l'eau. Les

BTEX, qui sont relativement solubles, font partie de ces composés. Comme l'eau souterraine est en mouvement, les contaminants sont transportés de leur point initial pour former un panache de contamination (Nyer, 1996).

Cela étant, lorsque l'essence est déversée dans un sol, sa composition change dans le temps à cause d'un phénomène appelé météorisation (ou « weathering » en anglais). Ce phénomène englobe plusieurs facteurs comme la volatilisation, la solubilisation et les réactions biotiques et abiotiques qui ont pour effet de modifier significativement la composition des déversements (Cookson, 1995). Les compositions d'une essence fraîche et d'une essence météorisée sont présentées à l'annexe B.

2.4 BIODÉGRADATION DES BTEX

Les biotechnologies reposent sur la dégradation des composés par des micro-organismes. C'est pourquoi cette section s'intéresse aux facteurs influençant la biodégradation des BTEX dans les eaux souterraines, aux voies métaboliques empruntées par les micro-organismes, à la cinétique de dégradation et aux interactions entre les contaminants.

2.4.1 Facteurs influençant la biodégradation des BTEX dans les eaux souterraines

Pour qu'il y ait biodégradation dans l'eau souterraine, il doit y avoir présence de certains éléments (Bedient *et al.*, 1994) :

- ✓ Bactéries capables de dégrader les contaminants : généralement, les micro-organismes pouvant dégrader les composés de l'essence sont omniprésents dans les sols et eaux souterraines (Cookson, 1995);

- ✓ Source de carbone et source d'énergie : le carbone organique provenant des BTEX est utilisé à la fois comme source d'énergie en libérant des électrons durant la transformation, et pour la croissance et le maintien cellulaire (Gibson et Subramanian, 1984);
- ✓ Accepteur d'électron : les électrons libérés par la transformation du carbone doivent être repris par un autre composé chimique;
- ✓ Nutriments : pour qu'il y ait croissance microbienne, certains nutriments sont nécessaires (e.g. azote, phosphore, calcium, potassium, magnésium, fer, etc.);
- ✓ Conditions environnementales appropriées : l'activité microbienne dépend de plusieurs conditions environnementales comme la température, le pH, la salinité, la pression, la concentration des contaminants et la présence d'inhibiteurs.

Puisque dans les cas de contamination par des composés de l'essence les deux premiers points sont généralement satisfaits, seuls les accepteurs d'électron, les nutriments et les conditions environnementales seront discutés ici en tant que facteurs influençant leur biodégradation dans les eaux souterraines.

2.4.1.1 Accepteurs d'électron

Les micro-organismes obtiennent leur énergie en catalysant une multitude de réactions d'oxydoréduction; aussi ont-ils besoin d'un accepteur terminal d'électron (ou simplement accepteur d'électron). Une revue complète du sujet a été réalisée par Smith, (1997). Un survol des éléments importants est présenté ici.

Tout d'abord, les accepteurs d'électron les plus communément retrouvés dans les eaux souterraines sont présentés au Tableau 2.4 avec leur séquence d'utilisation.

Tableau 2.4 : Caractéristiques générales des accepteurs d'électron communément retrouvés dans les eaux souterraines (ES), présentés dans leur séquence d'utilisation

MÉCANISME D'OXYDO-RÉDUCTION	ACCEPTEUR D'ÉLECTRON ^a	PRODUIT RÉDUIT ^a	SOURCES PRINCIPALES DANS LES ES ^a	CONC. MOYENNES DANS LES ES ^a	ZONE D'OXYDO-RÉDUCTION ^b
Aérobiose	O ₂	H ₂ O	Atmosphère	0-0.4 mM	+600 à +400 mV
Dénitrification	NO ₃ ⁻	N ₂	Contamination	0-20 mM	+500 à +300 mV
Réduction du magnésium	Mn(IV)	Mn(II)	Minéraux	Très faible	+400 à +200 mV
Réduction du fer	Fe(III)	Fe(II)	Minéraux	Très faible	+300 à +100 mV
Sulfato-réduction	SO ₄ ²⁻	S ²⁻	Minéraux Sources marines	0-15 mM	0 à -150 mV
Méthanogénèse	CO ₂	CH ₄	Contamination Carbonate solide Matière organique Dégradation	0-4 mM	-150 à -220 mV

Tiré de : ^a Smith (1997)

^b EPA (1984)

L'oxygène est l'accepteur d'électron qui fournit le plus grand rendement énergétique. Quand il est présent, c'est donc le métabolisme aérobie qui domine. Cependant, la disponibilité de l'oxygène en milieu souterrain est assez limitée de façon naturelle (0-0.4 mM). De plus, Rifai *et al.* (1995) notent qu'en général dans les eaux souterraines, la destruction des contaminants par biodégradation aérobie est importante à une concentration en oxygène dissous supérieure à 2 mg/L. Ainsi, lorsque l'oxygène est épuisé, le nitrate, le magnésium(IV), le fer(III), le sulfate et le dioxyde de carbone sont ensuite utilisés comme accepteurs d'électron. L'accepteur terminal d'électron utilisé dépend aussi en grande partie des conditions d'oxydoréduction qui prévalent dans l'environnement. La dernière colonne du Tableau 2.4 présente les zones rédox pour les différents mécanismes microbiologiques (EPA, 1984).

Les réactions globales de minéralisation sont présentées au Tableau 2.5 pour chacun des accepteurs d'électron.

Tableau 2.5 : Réactions de minéralisation aérobie et anaérobies des BTEX

RESPIRATION AÉROBIE
$(\text{BTEX}) + 9 \text{ O}_2 \rightarrow 7 \text{ CO}_2 + 4 \text{ H}_2\text{O}$
RESPIRATION ANAÉROBIE
Réduction du nitrate (dénitrification)
$5 (\text{BTEX}) + 36 \text{ NO}_3^- \rightarrow 18 \text{ N}_2 + 35 \text{ CO}_2 + 38 \text{ H}_2\text{O}$
Réduction du manganèse
$(\text{BTEX}) + 18 \text{ MnO}_2 + 29 \text{ H}^+ \rightarrow 18 \text{ Mn}^{2+} + 7 \text{ CO}_2 + 22 \text{ H}_2\text{O}$
Réduction du fer
$(\text{BTEX}) + 36 \text{ Fe}^{3+} + 21 \text{ H}_2\text{O} \rightarrow 36 \text{ Fe}^{2+} + 7 \text{ CO}_2 + 7 \text{ H}_2\text{O}$
Sulfatoréduction
$8 (\text{BTEX}) + 35 \text{ SO}_4^{2-} \rightarrow 35 \text{ S}^{2-} + 56 \text{ CO}_2 + 28 \text{ H}_2\text{O}$
Méthanogénèse
$(\text{BTEX}) + 42 \text{ H}_2\text{O} \rightarrow 35 \text{ CH}_4 + 21 \text{ CO}_2$
Tiré de Nyer <i>et al.</i> , 1996.

La disparition séquentielle de ces différents accepteurs d'électron donne lieu à une « graduation » dans les panaches de contamination (Figure 2.3), chaque zone étant associée à un potentiel d'oxydoréduction (POR).

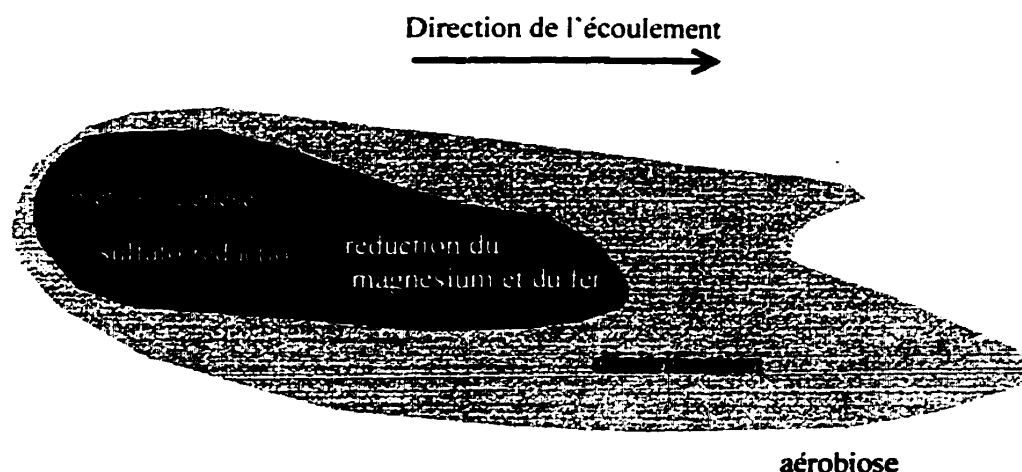


Figure 2.3 : Illustration schématisée de la répartition des accepteurs d'électron dans un panache d'eau souterraine contaminée.

Ainsi, suite à l'étalement d'une contamination, il y a création d'une zone anaérobie à l'intérieur du panache et aérobie au pourtour. Avec l'oxygène, la cinétique de biodégradation est cependant beaucoup plus rapide. C'est pourquoi l'oxygène est l'accepteur d'électron le plus souvent employé dans les procédés commerciaux de biorestauration. Dans le cas de la biorestauration *in situ* de composés de l'essence, l'apport en oxygène est presque toujours l'étape limitante de la biodégradation (Ritter et Scarborough, 1995; Thomas et Ward, 1989).

Plusieurs méthodes ont été développées afin de fournir l'oxygène nécessaire à une dégradation aérobie. L'oxygène peut d'abord être fourni à l'eau souterraine par bullage d'air ou d'oxygène pur (Brown, 1994; Reddy *et al.*, 1995; Suthersan, 1996) ou encore par injection d'eau oxygénée en surface. Cependant, la quantité d'oxygène fournie par ces méthodes est limitée à cause de la très faible solubilité de l'oxygène dans l'eau (Norris, 1994). L'injection de peroxyde d'hydrogène est aussi employée (Anid *et al.*, 1993; Brown et Norris, 1993; Lu, 1993; Norris *et al.*, 1993), car il est complètement soluble dans l'eau et se dissocie pour fournir de l'eau et $\frac{1}{2}$ molécule d' O_2 . Par contre, il s'agit d'un oxydant qui peut être toxique pour les micro-organismes (Thomas et Ward,

1989). Enfin, plusieurs recherches ont aussi testé l'emploi de composés à relâchement lent d'oxygène (ORC[®]) (Bianchi-Mosquera *et al.*, 1994; Borden *et al.*, 1997; Chapman *et al.*, 1997a; Chapman *et al.*, 1997b; Johnson et Odencrantz, 1997; Kao et Borden, 1993). Les résultats obtenus sont fort intéressants. Entre autres, à partir d'un mélange de béton et de peroxyde de magnésium testé par Borden *et al.* (1997), une diffusion lente d'oxygène a pu être obtenue pendant plus de 300 jours.

2.4.1.2 Nutriments

Plusieurs minéraux comme le fer, le magnésium et le soufre ne sont nécessaires aux micro-organismes qu'en traces et sont présents en quantités suffisantes dans les eaux souterraines. Cependant, pour ne pas limiter l'activité microbienne on doit souvent ajouter des sources d'azote et de phosphore (Norris, 1994). En effet, la présence d'hydrocarbures dans les environnements contenant de faibles concentrations en nutriments inorganiques se traduit souvent par des ratios carbone/azote et carbone/phosphore excessivement élevés (Leahy et Colwell, 1990). L'ajustement du ratio C/N/P peut alors être fait par l'ajout de fertilisants et de sels. Un rapport de 100/10/1 est généralement reconnu acceptable pour les populations microbiennes mixtes (Dibble et Bartha, 1979).

Lors de la dégradation aérobie, les nutriments ne font qu'accélérer la dégradation provoquée par l'ajout d'oxygène. Ainsi, dans le cas où le niveau de contamination est très faible, il se peut que les sources d'azote et de phosphore présentes dans l'environnement soient suffisantes et alors seul l'oxygène doit être ajouté (Norris, 1994).

2.4.1.3 Conditions environnementales

En plus des paramètres mentionnés précédemment, la température, le pH et la concentration de contaminants affectent aussi la biodégradation des BTEX.

La température influence la biodégradation des composés de l'essence en modifiant leur état physique et leur composition chimique de même qu'en affectant la vitesse des métabolismes microbiens et la composition des communautés microbiennes (Leahy et Colwell, 1990). Ainsi, les vitesses de dégradation diminuent avec la température selon la loi d'Arrhenius (Corseuil et Weber, 1994). Sous terre, les micro-organismes croissent préférentiellement dans un intervalle de températures allant de 20 à 45°C; cependant, certains micro-organismes ont des températures optimales de croissance aussi basses que 5-10°C. Les réactions biologiques ont donc lieu toute l'année dans les aquifères (Nyer *et al.*, 1996). Rappelons qu'au Québec la température de l'eau souterraine varie très peu durant l'année et se maintient autour de 10°C (Sylvestre et Grenier, 1987).

Les micro-organismes ont aussi une plage de pH optimal pour leur croissance. Pour la plupart des bactéries, la croissance a lieu dans une plage de pH allant de 4 à 9 et l'optimum pour la croissance est généralement entre 6,5 et 7,5 (Benefield et Randall, 1980).

Les vitesses de biodégradation de plusieurs composés organiques dans l'eau sont proportionnelles à la concentration du composé. Pour les hydrocarbures plus solubles, comme le toluène, la dégradation suit la cinétique de Michaelis-Menten (Leahy et Colwell, 1990). Des concentrations élevées d'hydrocarbures peuvent se traduire par une phase flottante qui réduit la disponibilité des nutriments et de l'oxygène, ou encore avoir des effets toxiques inhibiteurs sur les populations bactériennes (Leahy et Colwell, 1990). Par exemple, Alvarez *et al.* (1991) ont noté que des concentrations initiales de

250 mg/L pour le benzène et le toluène étaient inhibitrices pour les micro-organismes et qu'aucune dégradation n'avait lieu.

2.4.2 Voies métaboliques empruntées

Les micro-organismes capables de dégrader les hydrocarbures aromatiques sont omniprésents dans les sols (Cookson, 1995). D'ailleurs, la dégradation de ces composés par des micro-organismes est connue depuis le début du siècle et a été étudiée de façon extensive durant et après la seconde Guerre mondiale (Gibson et Subramanian, 1984). Une revue de l'avancement des connaissances dans le domaine, comprenant l'historique des développements a été réalisé en 1984 par Gibson et Subramanian. À cette époque, les voies métaboliques de dégradation des hydrocarbures aromatiques étaient déjà bien connues. Depuis, Smith (1990) a compilé les développements plus récents qui viennent, en grande partie, consolider les recherches antérieures. Ainsi, il est possible de dire que la grande majorité, sinon toutes les voies métaboliques de dégradation des BTEX ont maintenant été élucidées.

Les micro-organismes hétérotrophes « dégradeurs » d'hydrocarbures peuvent emprunter des voies métaboliques aérobies ou anaérobies. Cependant, la dégradation aérobie est généralement considérée comme étant plus rapide et plus efficace à cause du fait que ces réactions demandent moins d'énergie libre pour l'initiation et fournissent une quantité d'énergie plus important par réaction (Cookson, 1995).

La capacité génétique à dégrader les composés aromatiques sous conditions aérobies est très répandue chez les bactéries (Baker et Herson, 1994). Aussi, tous les composés BTEX ont au moins une voie de dégradation aérobie menant à la formation d'un catéchol. Les principales voies bactériennes sont résumées dans les paragraphes qui suivent.

Tout d'abord, deux voies divergentes sont employées par les bactéries pour dégrader le benzène (Figure 2.4). Toutes les deux ont le même mode d'attaque initial menant à la formation du dihydrodiol, puis du catéchol. Par la suite, le catéchol peut être catabolisé soit par *ortho*-fission via l'enzyme catéchol 1,2-dioxygénase ou alors par *méta*-fission via l'enzyme catéchol 2,3-dioxygénase (la voie β -ketoadipate). Ces deux voies ont été décrites pour différentes souches bactériennes utilisant le benzène (Smith, 1990) et sont présentées de façon générale par Baker et Herson (1994). Ainsi, l'oxydation de l'anneau benzénique se traduit par sa destruction, donnant lieu à un hydrocarbure aliphatique facilement oxydable (Cookson, 1995).

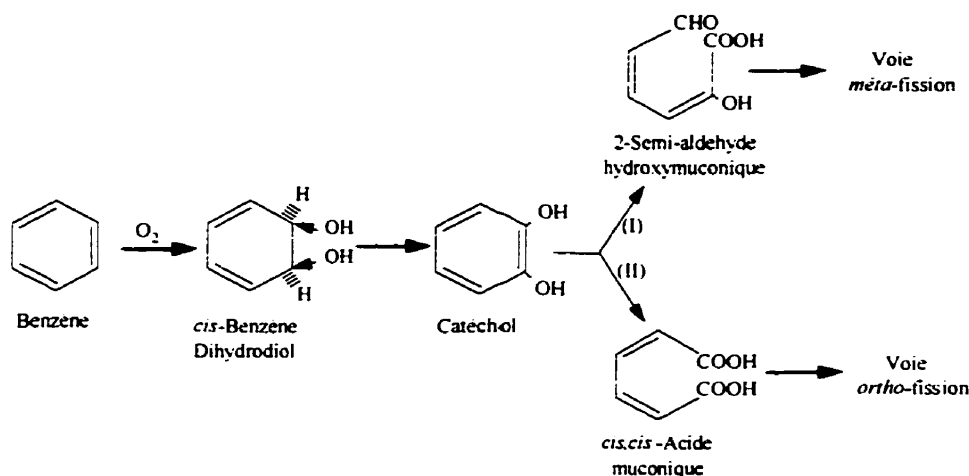
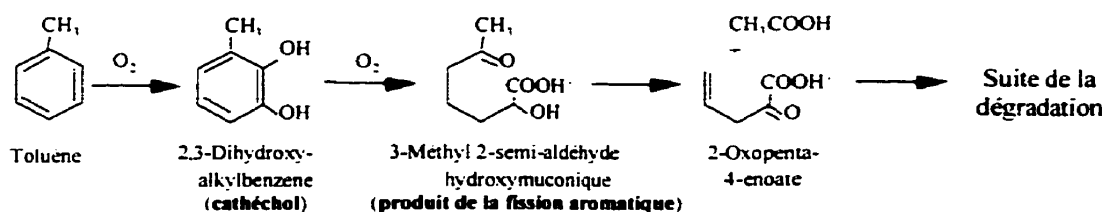


Figure 2.4 : Voies de biodégradation du benzène en conditions aérobies (I) *méta*-fission, (II) *ortho*-fission (Gibson et Subramanian, 1984).

La présence d'un ou de plusieurs groupements alkyl sur l'anneau benzénique (comme pour le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes) rend deux modes d'attaque possibles. Le premier est une attaque oxydative du noyau, menant à la formation d'un alkyl-catéchol, substrat pour la *méta*- ou l'*ortho*-fission aromatique discutées précédemment. Le second mode d'attaque est l'oxydation du groupement alkyl. Dans ce cas, il y a formation d'acides carboxyliques aromatiques, lesquels peuvent par la suite être oxydés en substrats propres à la fission aromatique (Gibson et Subramanian, 1984). Les voies

métaboliques possibles de dégradation du toluène, de l'éthylbenzène et d'autres mono-alkylbenzènes sont similaires. Pour cette raison, seules les voies de dégradation du toluène sont illustrées à la Figure 2.5.

Attaque oxydative du noyau



Attaque oxydative du groupement alkyl

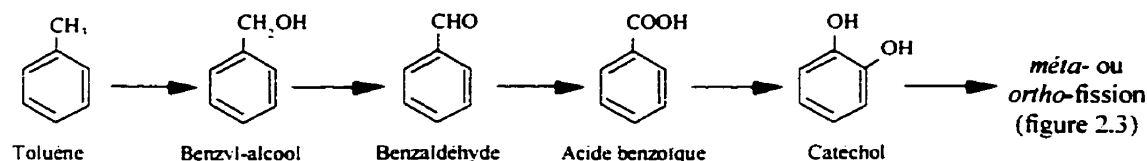


Figure 2.5 : Voies de biodégradation aérobie du toluène (Smith, 1990).

Les trois isomères du xylène sont co-métabolisés par les bactéries du genre *Nocardia* (Gibson et Subramanian, 1984), mais ne sont pas tous attaqués par la même voie. En effet, il semble que le *p*- et le *m*-xylène soient co-métabolisés par *ortho*-fission alors que le *o*-xylène l'est par *méta*-fission. De plus, il est intéressant de noter qu'aucune des cultures pures pouvant dégrader le *p*- et le *m*-xylène ne sont capables de dégrader le *o*-xylène, et vice-versa (Baggi *et al.*, 1987; Shraa *et al.*, 1987). Ainsi, jusqu'à récemment, seuls les isomères *méta*- et *para*- du xylène avaient été montrés biodégradables en conditions aérobies par des cultures pures (certaines souches de *Pseudomonas*). Ces deux composés, lorsqu'ils sont initialement oxydés au niveau d'un de leurs groupes méthyls, sont dégradés jusqu'au méthyl catéchol de la même manière que le toluène (Figure 2.6). Les catéchols obtenus peuvent ensuite être détruits par la *méta*-fission. L'attaque par oxydation directe du noyau aromatique est aussi possible pour le *p*- et le

m-xylène. Cependant, les catéchols produits par cette voie sont récalcitrants à toute dégradation subséquente (Smith, 1990).

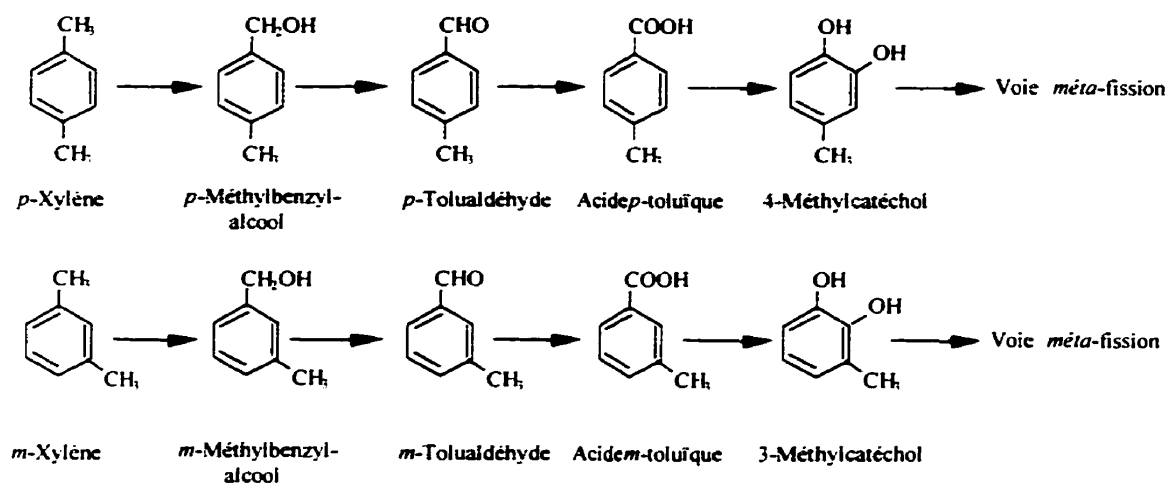


Figure 2.6 : Attaque oxydative d'un groupement alkyl; voie possible pour la biodégradation aérobie du *para*- et du *méta*-xylène (Smith, 1990).

La première démonstration de biodégradation complète du *o*-xylène par une culture pure utilisant le composé comme seule source de carbone et d'énergie a été faite en 1987 par Baggi *et al.* (*Pseudomonas stutzeri*) et Shraa *et al.* (*Corynebacterium*, souche C125). Selon ces deux sources, la voie de dégradation aérobie du *o*-xylène est telle que présentée à la Figure 2.7.

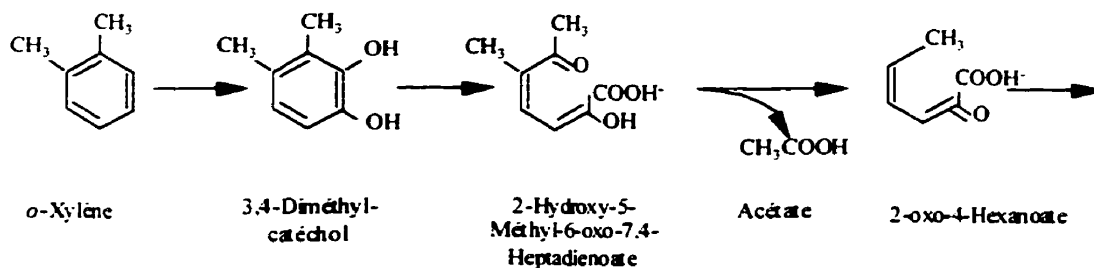


Figure 2.7 : Voie de dégradation aérobie de l'*ortho*-xylène (Smith, 1990).

Malgré le fait qu'une recharge naturelle ou artificielle des eaux souterraines puisse stimuler la biodégradation aérobie en réintroduisant de l'oxygène dans les régions anaérobies, la faible solubilité de l'oxygène et les taux de réaction rapides dans les environnements aérobie peuvent limiter sévèrement la biodégradation aérobie des hydrocarbures pétroliers (Barker *et al.*, 1987). Des recherches récentes ont montré que les réactions anaérobies comptent pour une part importante de la dégradation naturelle dans les aquifères (Nyer *et al.*, 1996). Comme les études ayant porté sur la dégradation anaérobie des BTEX sont nombreuses et que le présent projet s'intéresse à leur biodégradation aérobie, il n'a pas été jugé pertinent de les présenter ici. Cependant, Reinhard (1994) en fait une revue intéressante.

2.4.3 Cinétique de biodégradation

Dans plusieurs études rapportées dans la littérature, le modèle cinétique de Monod est utilisé pour modéliser la biodégradation des BTEX. Ce modèle décrit le taux d'utilisation du substrat de la façon suivante :

$$-\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{k \cdot C \cdot X}{K_s + C}$$

où	C	=	Concentration de substrat (mg substrat/L)
	t	=	Temps (jours)
	k	=	Taux maximal d'utilisation du substrat (mg substrat/mg cell.jour)
	X	=	Concentration de biomasse (mg cell/L)
	K _s	=	Coefficient de mi-saturation (mg substrat/L)

Selon Alvarez *et al.* (1991), l'équation de Monod représente bien la biodégradation du benzène et du toluène dans un système donné. Cependant, on retrouve des variations considérables dans les valeurs des coefficients (k et K_s) publiées dans la littérature. Ces différences sont dues au fait que l'équation de Monod est empirique et donc que ses

coefficients sont spécifiques au système étudié. Parmi les facteurs qui font varier les coefficients, et qui rendent difficile l'extrapolation des résultats d'un environnement à un autre, se trouvent : la diversité catabolique des micro-organismes, les différentes conditions environnementales et les différentes procédures analytiques et expérimentales employées. De surcroît, même en conditions de croissance constantes dans un système précis et connu, Bielefeldt et Stensel (1998) ont obtenu des coefficients biocinétiques extrêmement variables lors de la biodégradation des BTEX par des cultures mixtes.

2.4.4 Interactions entre les BTEX

La présence d'un composé BTEX donné peut théoriquement stimuler la dégradation d'un autre composé BTEX en induisant les enzymes cataboliques nécessaires à sa dégradation. Une autre interaction bénéfique serait qu'un composé BTEX (le toluène par exemple) agisse comme substrat primaire et stimule la croissance microbienne, ce qui favoriserait la dégradation par cométabolisme d'un autre composé BTEX (le xylène par exemple). Par contre, il se pourrait aussi que la présence d'un composé BTEX inhibe la dégradation d'un autre par toxicité, diauxie, répression catabolique, inhibition compétitive pour les enzymes ou encore en épuisant les accepteurs d'électron disponibles (Alvarez et Vogel, 1991). L'identification de ces interactions aiderait à comprendre pourquoi un composé persiste longtemps sur un site contaminé alors qu'un autre est rapidement dégradé.

Malheureusement, les études ayant porté sur les interactions entre le benzène, le toluène et le *p*-xylène ou le *o*-xylène (Alvarez et Vogel, 1991; Arvin *et al.*, 1989; Oh *et al.*, 1994) ont présenté des résultats assez variables. Par exemple, une dégradation accrue du benzène a été notée en présence de toluène par *Pseudomonas* sp. CFS-215, de même qu'une dégradation du toluène uniquement en présence de benzène par *Arthrobacter*

sp. HCB (Alvarez et Vogel, 1991). Ces résultats sont en opposition avec ceux présentés par Oh *et al.* (1994), montrant que lors de la dégradation du benzène et du toluène par *Pseudomonas* PPO1, les deux composés exerçaient une inhibition compétitive.

Alvarez et Vogel (1991) concluent que malgré le fait que les composés BTEX ont des structures chimiques semblables, la diversité catabolique des micro-organismes dans l'environnement et l'utilisation de souches pures par rapport aux cultures mixtes rendent impossible les généralisations quant à la capacité d'un composé BTEX à favoriser ou à inhiber la dégradation d'un autre composé BTEX dans un environnement donné.

2.5 TECHNOLOGIES DE TRAITEMENT DES EAUX SOUTERRAINES CONTAMINÉES PAR LES BTEX

Face à une contamination d'eau souterraine, outre l'enlèvement de la source de contaminants, trois champs d'action sont possibles : le confinement de la zone de contamination; la restauration active de l'eau par extraction et/ou traitement et enfin le suivi lié à l'atténuation naturelle.

Le confinement vise uniquement à empêcher l'eau souterraine contaminée de s'étaler à des zones propres et à contrôler le mouvement de l'eau souterraine fraîche de manière à ce qu'elle ne traverse pas les zones contaminées. Parmi les systèmes d'isolement se trouvent les barrières souterraines et le contrôle de l'écoulement. Les premières sont constituées de barrières physiques installées au niveau de l'aquifère et permettant de diriger l'écoulement de l'eau souterraine. Le contrôle de l'écoulement permet le même résultat, mais par le biais de tranchées ou de puits de pompage et d'injection installés dans l'aquifère contaminé. La revue des différents types de confinements et des autres

méthodes d'action face à la contamination d'eau souterraine a été présentée par l'EPA (1990) et mise à jour par Boulding (1995).

La partie qui suit traite des méthodes de restauration des eaux souterraines contaminées aux produits de l'essence. En premier lieu, les traitements *ex situ*, où l'eau contaminée est extraite de l'aquifère et traitée en surface, seront abordés. Ensuite les traitements *in situ*, i.e. à même l'aquifère ou sous la surface du sol, seront présentés.

2.5.1 Le traitement *ex situ* ou le pompage et traitement

La technologie du pompage et traitement, mieux connue sous le nom anglais de « Pump-and-Treat » (P-T), est la méthode de restauration d'aquifère traditionnellement employée : pendant plus de 10 ans cette méthode a été recommandée pour le traitement d'une majorité de sites contaminés aux États-Unis. Encore aujourd'hui, près de 75 % des sites *Superfund* utilisent l'approche du P-T lorsque l'eau souterraine est contaminée (EPA, 1996).

Le pompage et traitement classique consiste d'abord à extraire l'eau polluée par des puits de pompage pénétrant le panache contaminé. Ensuite, l'eau est traitée en surface par une technologie quelconque (physique, chimique ou biologique) (Boulding, 1995). Finalement, l'eau traitée peut être réinjectée dans l'aquifère à proximité de la zone de contamination; il s'agit alors de systèmes en « boucle fermée » (Cartwright, 1991) ou simplement rejetée en surface (Taylor *et al.*, 1993).

2.5.1.1 Limites du pompage et traitement conventionnel

Les limites de la technologie du P-T ont été largement discutées dans la littérature au cours des dernières années (Cartwright, 1991; Hasbach, 1993; Lee *et al.*, 1988; Macdonald et Kavanaugh, 1994; McKay et Cherry, 1989; Nyer, 1996; Starr et Cherry,

1994; Taylor *et al.*, 1993). Les critiques qui ont été adressées au P-T faisaient surtout référence à son incapacité à restaurer entièrement une nappe phréatique. Entre autres, Hasbach (1993) mentionne que le P-T est efficace pour réduire la masse de contaminant ou pour empêcher l'étalement de la contamination, mais qu'il a un piètre rendement quand il s'agit de nettoyer les aquifères sous les normes d'eau potable. Dans la même veine, on peut lire chez différents auteurs qu'après la mise en marche du pompage, on peut observer une baisse drastique de la contamination, mais qu'après cette réduction initiale, les concentrations ont tendance à rester constantes (Cartwright, 1991). De plus, lorsqu'on arrête le pompage, les contaminants résiduels en phase libre continuent à se dissoudre dans l'eau souterraine et recontaminent l'aquifère (Hasbach, 1993; McKay et Cherry, 1989; Taylor *et al.*, 1993). À cause de cette recontamination continue, Starr et Cherry (1994) notent qu'il faudrait opérer le P-T sur de très longues périodes de temps (des décennies ou des siècles) pour empêcher l'élargissement du panache contaminé. Comme les systèmes de P-T nécessitent des apports constants d'énergie pour le pompage de l'eau, pour l'opération du système de traitement, l'entretien et le suivi, leur fonctionnement à long terme est extrêmement coûteux. Cartwright (1991) ajoute que le P-T n'est pas non plus l'alternative la plus efficace à court terme à cause du temps nécessaire pour le design, les tests et l'installation de tels systèmes.

Toutes les limites du P-T ont toujours été connues. Par conséquent, le véritable problème n'est pas la technologie, mais le fait qu'on lui reproche de ne pas restaurer entièrement un site, alors qu'elle n'a jamais été conçue pour ça. Nyer (1993) a d'ailleurs consacré un chapitre entier de son livre « Practical Techniques for Groundwater and Soil Remediation » à mettre au clair la situation du P-T. Il précise que le P-T doit continuer à être utilisé — comme il l'a toujours été — pour contrôler le mouvement des panaches de contamination, et que même lorsque les techniques *in situ* sont employées, du pompage est nécessaire pour obtenir les schémas d'écoulement

désirés. De la même manière, Hoffmann (1993) et Marquis (1995) se sont élevés contre la dénonciation massive du P-T.

Après avoir condamné la technologie pendant plusieurs années, l'agence américaine de protection de l'environnement (U.S. EPA) s'est ravisée en 1996, disant que « malgré le fait que l'efficacité des systèmes de P-T ait été remise en question, après deux décennies d'utilisation cette approche reste une composante nécessaire dans la plupart des efforts de restauration des eaux souterraines contaminées et reste appropriée tant pour la restauration que pour le confinement des panaches de contamination » (EPA, 1996).

2.5.2 Le traitement *in situ*

Les traitements *in situ*, tout comme les traitements *ex situ*, peuvent être de différents types. L'enlèvement des contaminants peut se faire par une méthode chimique, thermique, physique ou biologique (un survol des méthodes existantes est présenté par Hyman et Bagaasen, 1997). Dans le cas des eaux souterraines contaminées à l'essence, les traitements biologiques sont particulièrement appropriés à cause de la grande facilité avec laquelle les hydrocarbures aliphatiques et monoaromatiques sont biodégradés par les micro-organismes indigènes des sols.

Lorsqu'ils sont applicables, les traitements biologiques peuvent s'avérer avantageux du fait qu'ils permettent la destruction partielle ou complète des contaminants plutôt que de simplement les transférer à une autre phase de l'environnement (Lee *et al.*, 1988; Thomas et Ward, 1989). Pour ce qui est des systèmes de traitement *in situ*, ils ont l'avantage de restaurer en dérangeant au minimum le site (Norris, 1994) et permettent souvent de traiter les contaminants qui sont adsorbés aux particules solides de l'aquifère ou retenus dans les pores du matériel (Sims *et al.*, 1992), ce que le pompage et traitement seul ne fait pas.

L'historique et la revue des méthodes de traitement *in situ* ont été présentés par plusieurs auteurs (Boulding, 1995; Lee *et al.*, 1988; Norris, 1994; Ritter et Scarborough, 1995; Sims *et al.*, 1992; Thomas et Ward, 1989). Un bref survol des types de techniques existantes est proposé dans les paragraphes qui suivent.

2.5.2.1 Biostimulation in situ

Généralement, les procédés *in situ* emploient les micro-organismes présents naturellement dans le milieu, car ces organismes s'adaptent plus rapidement aux changements dans leur environnement (Ritter et Scarborough, 1995). La biostimulation consiste donc en l'identification et l'ajustement des facteurs physiques et chimiques qui peuvent influencer le taux de dégradation des contaminants par les micro-organismes. Cette stimulation se fait souvent par l'injection directe dans l'aquifère d'oxygène et de nutriments nécessaires à la croissance des populations microbiennes indigènes.

Cette façon de procéder comporte cependant des désavantages importants. D'abord, dans tous les procédés de biostimulation employant l'injection de nutriments et d'oxygène, il y a souvent croissance préférentielle de biomasse à proximité des points d'alimentation, ce qui mène parfois au colmatage des puits d'injection (Lee *et al.*, 1988; Taylor *et al.*, 1993). De plus, très peu de mélange se produit entre l'eau contaminée et les fluides injectés. En effet, le courant injecté ne fait que déplacer l'eau contaminée sans s'y mélanger et les micro-organismes n'ont pas accès à la fois aux nutriments et aux polluants à dégrader (Devlin et Barker, 1994). De ce fait, les taux de traitement ne sont pas substantiellement augmentés. Enfin, dans les sols hétérogènes, les zones de faibles perméabilités sont court-circuitées, car les fluides injectés vont circuler préférentiellement à travers les zones de perméabilité élevée (Weber et Barker, 1993). Des régions entières du panache contaminé ne sont alors pas traitées et sont libres de poursuivre leur migration.

Suite à ces observations, une nouvelle génération de procédés *in situ* a été développée : les murs réactifs.

2.5.2.2 Murs réactifs et « entonnoir-barrière »

Un mur réactif est une structure installée au niveau de l'aquifère pour traiter les eaux souterraines contaminées. Le principe de cette technologie consiste en un mur perméable placé en travers de l'écoulement du panache contaminé et rempli de matériaux actifs choisis en fonction du contaminant que l'on cherche à éliminer (EPA, 1996; Palmer, 1996). Le contaminant, en passant à travers le mur réactif peut être retenu dans la zone active, dégradé ou transformé en substances moins toxiques. L'eau souterraine est donc décontaminée sans avoir été déviée de son cours naturel. Beaucoup des travaux touchant les murs réactifs ont été effectués par le « Waterloo Center for Groundwater Research » à l'Université de Waterloo en Ontario.

Ainsi, les murs réactifs utilisent le mouvement naturel de l'eau pour amener les contaminants à travers la zone réactive où ils sont enlevés ou dégradés. Ces murs réactifs peuvent être combinés à des murs de faible conductivité hydraulique permettant de diriger l'écoulement du panache de contamination vers la zone active de manière à limiter sa dispersion et à réduire la surface nécessaire de traitement (Starr et Cherry, 1994). La technologie issue de la fusion des murs réactifs *in situ* et des murs imperméables est souvent appelée « entonnoir-barrière » (en anglais « Funnel-and-Gate »). La technique consiste à confiner le panache contaminé à l'aide de barrières souterraines (« entonnoir ») de manière à diriger l'écoulement naturel à travers une unité de traitement (« barrière ») placée à même l'aquifère (Figure 2.8). Le réacteur *in situ*, au cœur du système, peut traiter l'eau de manière physique, chimique ou biologique.

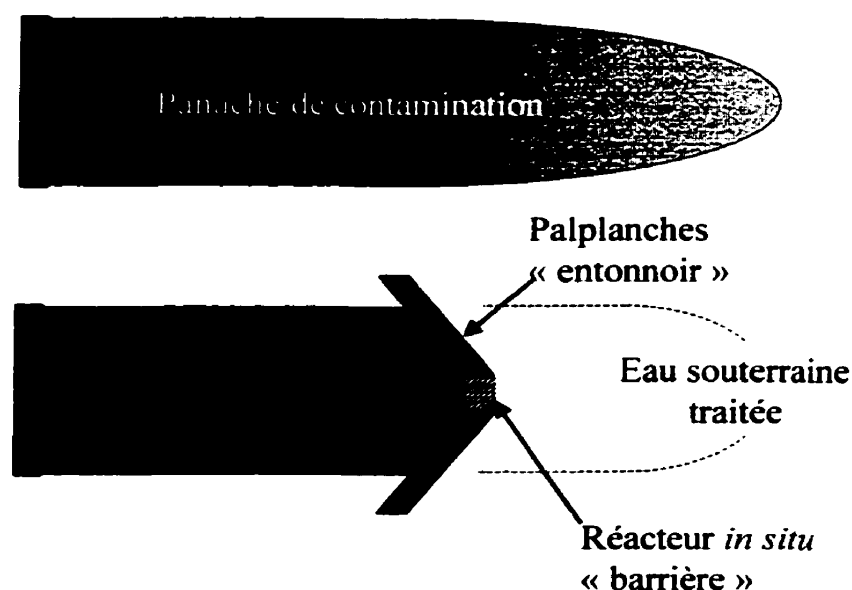


Figure 2.8 : Schématisation d'un mur réactif (Starr et Cherry, 1994).

L'avantage majeur des systèmes d'entonnoir-barrière par rapport aux autres méthodes de biorestauration d'aquifères réside dans leur fonctionnement passif. En effet, la plupart des réacteurs *in situ* ne nécessitent pas d'apport constant d'énergie pour le pompage d'eau ou d'air, ce qui les rend moins susceptibles aux bris mécaniques ou aux pannes de courant (Palmer, 1996; Starr et Cherry, 1994). Ensuite, considérant que la vie utile d'un réacteur est de plusieurs années ou décennies, l'entretien de ces systèmes est minimal. Enfin, moins intensifs que l'injection de nutriments dans l'aquifère, les systèmes d'entonnoir-barrière sont conçus pour effectuer la restauration à long terme, de manière à traiter les zones moins perméables (Barker *et al.*, 1993).

Malgré le fait que ces types de systèmes surpassent certains problèmes hydrogéologiques, d'autres limites subsistent. Tout d'abord, la fraction de contamination ayant passée dans l'aquifère avant l'implantation de la zone bioactive peut être hors de portée du traitement et devoir être traitée par d'autres méthodes. Ensuite, la dispersion dans les milieux fracturés peut difficilement être prédite et la profondeur à laquelle il est possible d'installer un mur imperméable est limitée (Devlin

et Barker, 1994). Les aquifères très profonds et les milieux fracturés ne sont donc pas « restaurables » par cette technologie. Enfin, les travaux d'excavation et d'installation de palplanches peuvent être lourds et coûteux.

C'est à partir de ces constatations que l'idée du nouveau concept de biofiltration *in situ* (présenté à la section 1.3) a été développée.

2.6 BIOFILTRATION APPLIQUÉE AUX EAUX SOUTERRAINES

La filtration biologique consiste à faire passer un courant contaminé à travers un lit filtrant contenant des micro-organismes sous forme de biofilm. Les composés biodégradables sont absorbés par le matériel du lit ou par le biofilm, puis oxydés biologiquement en des substances inoffensives (Van Groenestijn et Hessenlink, 1993).

Dans la littérature, le terme « biofiltration » fait généralement référence au traitement d'effluents gazeux de composés organiques¹. Ainsi, le traitement des BTEX et autres COV en phase gazeuse est connu depuis plusieurs décennies et a été largement étudié au cours des dernières années (Abumaizar *et al.*, 1998; Corsi, 1995; Nguyen *et al.*, 1997; Saberiyani *et al.*, 1993; Shareefdeen et Baltzis, 1994; Tahraoui *et al.*, 1995, pour n'en citer que quelques-uns).

Du côté des effluents liquides, la filtration biologique est aussi connue depuis bon nombre d'années et a surtout été développée pour le traitement des eaux usées. Les procédés conventionnels de filtres percolateurs (« trickling filters ») et autres procédés à biomasse fixée (« fixed film processes ») sont parfois employés comme traitement *ex*

¹ Dans le présent document, le terme « biofiltration » est employé de manière générique et s'applique autant au traitement des effluents gazeux qu'à celui des effluents liquides.

situ, suite au pompage d'eaux souterraines contaminées (Boulding, 1995; Lee *et al.*, 1988). Cependant, la biofiltration est encore très peu utilisée comme traitement *in situ* et, d'après la documentation consultée, les recherches sont assez peu nombreuses.

Parmi les études sur le sujet, Verheul *et al.* (1993) ont employé un filtre à sable, généralement utilisé pour la purification de l'eau potable, pour le traitement d'eau souterraine contaminée par des hydrocarbures aromatiques. À l'échelle pilote, le filtre de 1,0 m³ était alimenté à courant descendant en eau et en air. Des charges hydrauliques de 1 à 3,4 m³/h et des charges organiques entre 2 et 100 g/(m³.h) étaient alimentées au filtre. De bonnes capacités d'enlèvement ont été obtenues (avec un maximum de 60 g/m³.h), mais un tel système demande un entretien régulier et énormément d'instrumentation.

En laboratoire, Yerushalmi *et al.* (1997) ont étudié la biodégradation aérobie de l'essence dans une bio-barrière de 5,2 L. Une tourbe granulaire (Produits recyclables Bioforet, Québec) et de l'acier inoxydable extrudé ont été employés comme supports pour immobiliser une culture microbienne préalablement isolée et enrichie. Dans les expériences en continu réalisées avec la tourbe granulaire, l'affluent contenait de 22,2 à 74,0 mg/L d'essence et les temps de résidence au sein de la barrière variaient de 3 à 6 jours. Les taux d'enlèvement obtenus se trouvaient entre 4,0 et 13,9 mg/(L.j). Lorsque l'acier inoxydable était employé comme support, les taux d'enlèvement s'évaluaient de 3,2 à 22,9 mg/(L.j).

2.6.1 La tourbe en tant que milieu filtrant

La tourbe représente la partie du sol des tourbières formée de résidus organiques accumulés à la suite de la décomposition anaérobie de divers végétaux. Il s'agit d'une substance très complexe, dont les principaux constituants sont la cellulose, les hémicelluloses, les résines, les cires, les sucres, les peptides, la lignine, les substances

humiques et quelques métaux et produits inorganiques. Au plan chimique, la tourbe est formée d'un noyau aromatique auquel sont rattachés des peptides et des hydrates de carbone. Des groupements carboxyles (-COOH) et hydroxyles (-OH) sont aussi en contact avec le noyau aromatique, ce qui en fait un échangeur naturel d'ions (Coupal, 1985). À cause de cette capacité d'échange ionique, la tourbe a d'abord été employé pour le traitement d'eaux usées contaminées par des métaux (Coupal et Lalancette, 1976). Des recherches plus récentes (Cohen *et al.*, 1991; Rael *et al.*, 1995) ont étudié la tourbe en tant qu'agent absorbant pour extraire des hydrocarbures de l'eau souterraine. Enfin, Kao et Borden (1997) ont développé en laboratoire une bio-barrière servant à traiter en conditions dénitrifiantes de l'eau souterraine contaminée par les TEX. Dans leur système, de la tourbe était employée comme étape de polissage, pour effectuer la dénitrification biologique et pour enlever les contaminants résiduels par absorption.

Ainsi, plusieurs des études ayant porté sur le traitement d'eaux souterraines contaminées aux produits de l'essence employaient de la tourbe. Par ailleurs, à l'exception de l'étude de Forget (1997) décrite à la section 1.2, aucune des recherches consultées n'utilisait la tourbe comme source de micro-organismes et de nutriments. De plus, le système de biofiltration envisagé ne requiert pas d'infrastructure complexe en surface ni d'excavation profonde. Pour ces raisons, le développement d'un nouveau système de biofiltration *in situ* à base de tourbe granulaire pour le traitement des eaux souterraines contaminées par les BTEX a toute sa raison d'être.

CHAPITRE 3

MATÉRIEL ET MÉTHODES

Le présent projet a été réalisé en plusieurs étapes. D'abord, une caractérisation de la tourbe granulaire a été effectuée en laboratoire. Suite à cela, l'étape de conception et de construction des biofiltres pilotes a été effectuée. Enfin, les essais de biofiltration sur le terrain ont été réalisés, accompagnés de suivis microbiologique et hydrodynamique.

3.1 CARACTÉRISATION INITIALE DE LA TOURBE GRANULAIRE

Les propriétés de la tourbe granulaire ont déjà été étudiées en laboratoire par Forget (1997). Cependant, depuis ces expériences, des modifications ont été apportées au procédé de fabrication de la tourbe granulaire. Ainsi, pour s'assurer que la nouvelle tourbe granulaire possédait toujours les propriétés microbiologiques et physiques qui en faisait un bon milieu filtrant, des essais préliminaires de caractérisation ont été réalisés.

3.1.1 Description de la tourbe granulaire

Toutes les expériences présentées dans ce mémoire ont été réalisées avec la même tourbe. Il s'agit d'un matériau développé par Premier Tech (Rivière-du-Loup, Québec), composé d'un mélange de tourbe de sphaigne et d'un agent liant. Les propriétés chimiques et physiques de la tourbe de sphaigne employée dans la fabrication des granules sont présentées au Tableau 3.1. Les données de ce tableau, fournies par Premier Tech, sont présentées à titre informatif seulement. En effet, la tourbe étant un produit naturel, les résultats d'analyse peuvent varier de manière significative d'un

échantillon à l'autre. De plus, le Tableau 3.1 permettra de comparer les propriétés de la tourbe granulaire, qui seront discutées plus tard, à celles de la tourbe seule.

Tableau 3.1 : Caractéristiques physiques et chimiques de la tourbe de sphaigne employée dans la fabrication de la tourbe granulaire

PROPRIÉTÉS CHIMIQUES	
pH	3,9 - 4,5 (1:3 v:v dans l'eau)
Conductivité électrique	0,09 - 0,18 mmhos/cm
Ratio C/N	100 - 135
Capacité d'échange cationique (CEC)	150 - 250 meq/100 g
Matière organique	90 - 96 %
Contenu en cendres	4 - 10 %
Degré d'humification	H3 - H4 (échelle Von Post)
PROPRIÉTÉS PHYSIQUES	
Porosité totale	96 - 97 %
Densité apparente (tourbe sèche)	0,06 - 0,07 g/cm ³
Densité apparente (tourbe fraîche)	0,11 - 0,14 g/cm ³
Capacité de rétention d'eau	1100 - 1400 % massique
Contenu en eau (tourbe fraîche)	35 - 50 %

La méthode de fabrication de la tourbe granulaire consiste à mélanger de la tourbe de sphaigne nettoyée et un agent liant. Le mélange est chauffé et les granules sont ensuite découpés en cubes d'environ 2,5 cm de côté. Une photographie de ce matériau est présentée à l'annexe C.

3.1.2 Évaluation préliminaire de l'activité biologique en microcosmes

Un essai préliminaire de minéralisation en microcosmes a été réalisé en conditions aérobies pour vérifier que les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire possèdent la capacité génétique de biodégrader le ¹⁴C-toluène de façon efficace et sans

ajout de nutriment. Des conditions identiques à celles de Forget (1997) ont été employées de manière à permettre la comparaison des résultats.

Les essais ont été réalisés avec de l'eau souterraine synthétique contaminée et plusieurs méthodes d'aération ont été testées afin de les comparer et de s'assurer que l'oxygène n'était pas en quantité limitante. Une description succincte des essais est présentée dans cette section. Le protocole expérimental PE 19-A, présenté à l'annexe D, décrit en détail l'expérience réalisée.

La composition de l'eau souterraine synthétique, développé par Ross *et al.* (1998), est présentée au Tableau 3.2.

Tableau 3.2 : Composition de l'eau souterraine synthétique

Composés	mg/L	Volumes de solutions
FeCl ₂	1,4	0,140 ml de solution 1 %
NaCl	617,3	6,17 ml de solution 10 %
Na ₂ CO ₃	678,4	6,78 ml de solution 10 %
KNO ₃	6,1	0,610 ml de solution 1 %
K ₂ HPO ₄	10,7	0,107 ml de solution 1 %
CaCO ₃	15,0	0,150 ml de solution 10 %
MgSO ₄	18,8	0,188 ml de solution 1 %
H ₂ O distillée	---	985,85 ml
TOTAL	---	1000 ml

La tourbe, qui contient naturellement une grande quantité d'acides humiques, a la propriété de conférer un pouvoir acide à l'eau dans laquelle elle trempe (pH près de 4; voir Tableau 3.1). Comme le pH optimal pour les micro-organismes est généralement près de la neutralité (Benefield et Randall, 1980), un tampon phosphate (1M à pH 7) a été ajouté à l'eau des microcosmes à une concentration de 0,05 M (i.e. 50 mL de solution tampon pour 1000 mL d'eau). La composition de la solution tampon utilisée

était, pour 100 mL de solution : 39.2 mL de NaH_2PO_4 (1M) et 60.8 mL de K_2HPO_4 (1M). Un microcosme témoin (sans radioactivité) servait de contrôle de pH, et régulièrement, la mesure du pH dans l'eau de ce microcosme était effectuée à l'aide d'un pH-mètre Accumet® (modèle 25, Fisher Scientific, Denver Instrument Co.) muni d'une sonde Orion PerpHecT (Orion, Beverly, MA).

Dans les expériences subséquentes, la tourbe granulaire avait perdu son pouvoir d'acidification et l'ajout de tampon n'était plus nécessaire. Un microcosme témoin (sans radioactivité) était tout de même préparé et le pH était suivi régulièrement tout au long des essais de minéralisation.

3.1.2.1 Essais de minéralisation

Chacun des microcosmes était constitué d'une bouteille sérologique de 120 mL contenant 2.00 ± 0.01 g (environ 20 mL) de tourbe granulaire émietée avec un mortier et 80.0 ± 0.5 mL d'eau souterraine synthétique tamponnée. En tout, 16 microcosmes ont été suivis.

Le milieu filtrant et l'eau étaient laissés en contact (agités à 200 rpm) pendant deux jours pour permettre à la tourbe de bien absorber l'eau et de sédimenter au fond des bouteilles. Cette procédure avait pour but d'assurer des conditions stables d'aération tout au long des essais de minéralisation, sans quoi, la tourbe flottait durant quelques jours au début des essais, ce qui permettait de supposer qu'une plus grande quantité d'oxygène était alors disponible aux micro-organismes. Enfin, dans certaines séries d'essais, l'eau contenue dans les microcosmes a été « bullée » durant une heure avec de l'air humide avant l'injection de radioactivité pour assurer des conditions aérobies dans les microcosmes.

Une éprouvette (tube en verre de 5 mL) contenant 1 mL de KOH (1N) était introduite dans chacune des bouteilles et servait de trappe pour capter le CO₂ dégagé au cours de la minéralisation. La Figure 3.1 illustre un microcosme et ses composantes.

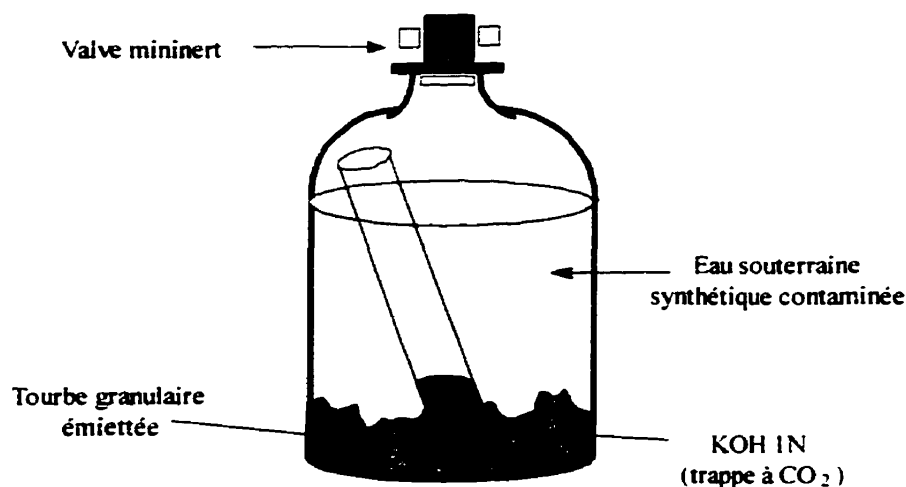


Figure 3.1 : Microcosme servant aux tests de minéralisation.

Une solution de toluène radioactif de 250 000 dpm/ μ L a été préparée à partir de toluène marqué au carbone-14 (60 mCi/mmol, pureté \geq 98 %, Sigma Chemicals, St-Louis, MO, USA) et de toluène non marqué de pureté supérieure à 99,9 % (Anachemia Chemicals, Montréal, Québec). . Pour obtenir une concentration initiale de 4,3 mg/L de toluène dans les microcosmes, un volume de 0,4 μ L de la solution radioactive était injecté dans chacune des bouteilles. Ainsi, environ 100 000 dpm par microcosme étaient initialement injectés. Enfin, les bouteilles sérologiques étaient toutes refermées à l'aide de valve Mininert (Supelco, Bellefonte, PA, USA) pour empêcher les pertes de toluène par volatilisation.

Chaque essai a été réalisé en triplicata. De plus, un témoin abiotique contenant 0,2 % p/v de nitrure de sodium (NaN₃) a été préparé pour chacun des essais. Les trappes à CO₂ ont été échantillonnées aux 48 heures environ, selon le protocole standard d'opération de la Chaire (PSO-A10), présenté à l'annexe D. Les microcosmes

ont été incubés à une température de 10 °C et agités à 100 rpm dans le noir afin d'éviter les pertes de polluant par photo-oxydation.

3.1.2.2 Analyse des courbes de minéralisation

En général, les courbes de minéralisation présentent trois phases principales caractérisées par trois paramètres importants : 1) le temps de latence (en jours); 2) le taux maximal de minéralisation (en % de minéralisation/jour) et 3) le plateau, ou l'asymptote (en % cumulatif de minéralisation).

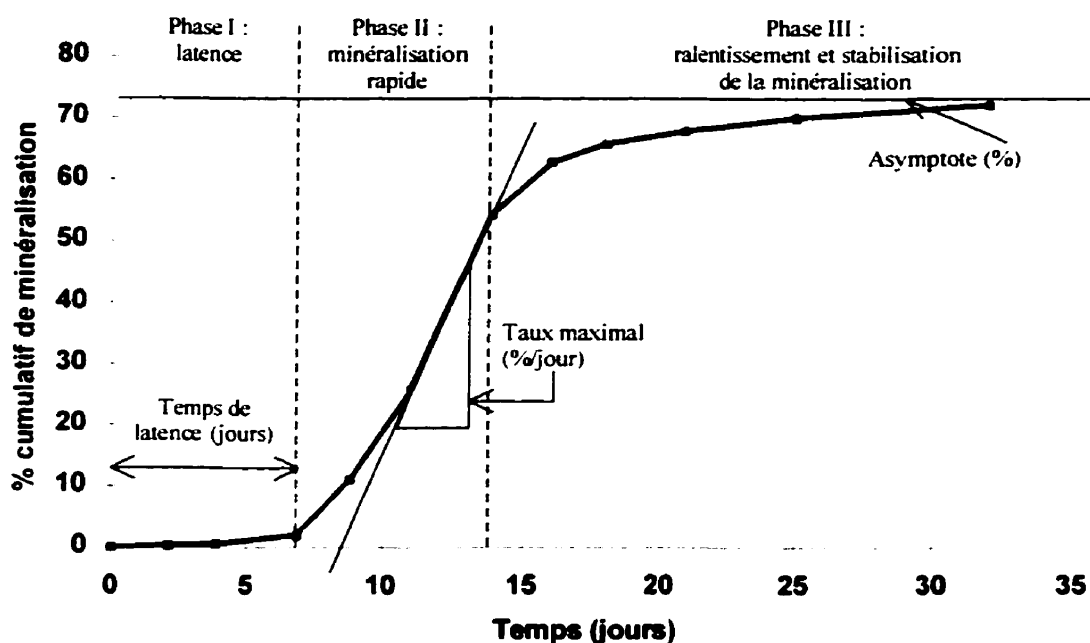


Figure 3.2 : Courbe typique de minéralisation issue d'un essai en microcosme.

La phase I, précédant la dégradation du contaminant, est appelée période de latence. C'est la période entre l'ajout du contaminant et le moment où une dégradation appréciable commence à être observée. Cette phase peut être associée à l'acclimatation de la biomasse aux conditions prévalant dans le microcosme (température, pH, concentration du contaminant, concentrations en nutriments, etc.) ou alors à la

croissance bactérienne et à synthèse d'enzymes nécessaires à la biodégradation. De plus, dans les cas des microcosmes contenant de l'eau souterraine contaminée en plus du composé radiomarké, il est possible qu'un phénomène de diauxie¹ ralentisse initialement la biodégradation du produit d'intérêt (Alexander, 1994). Selon Millette *et al.* (1995), la période de latence est un bon indicateur de la capacité du consortium microbien indigène à s'adapter pour « biotransformer » les composés cibles.

La seconde phase est caractérisée par une importante activité de minéralisation. On y retrouve le taux maximal de minéralisation, qui peut être exprimé en %/jour ou en mg/L.j lorsqu'on tient compte de la concentration initiale de contaminant. Bien qu'il ne soit pas possible d'extrapoler ce taux à un système pilote en continu, la comparaison de taux maximums de minéralisation issus de différents essais en microcosmes donne une indication quant à l'état de la biomasse et à l'activité microbienne dans le milieu. Dans la présente étude, le taux maximal de minéralisation a été calculé comme étant la pente maximale entre deux points d'échantillonnage.

Enfin, la troisième phase est marquée par le ralentissement de la minéralisation et l'atteinte d'un plateau, dus à la non disponibilité du substrat (contaminant) (Al-Bashir *et al.*, 1994). Lorsque le substrat peut être utilisé par les micro-organismes comme source de carbone pour la synthèse cellulaire (ce qui est le cas pour les BTEX; Gibson et Subramanian, 1984), une partie du carbone organique fourni par le contaminant radiomarké est assimilé par les bactéries. Ainsi, le pourcentage de minéralisation mesuré à l'aide $^{14}\text{CO}_2$ issu de la respiration cellulaire n'atteint généralement pas 100 %. Dépendant du rendement de chaque substrat et des conditions environnementales, la quantité de $^{14}\text{CO}_2$ produite par rapport à la biomasse variera (Sturman *et al.*, 1995). Millette *et al.* (1995) mentionnent qu'un faible pourcentage final de minéralisation est une bonne indication de l'assimilation du substrat dans la biomasse et/ou de

¹ Utilisation préférentielle et préalable d'un autre substrat.

minéralisation incomplète, possiblement liée à la présence de composés intermédiaires. Il est aussi possible qu'une partie du contaminant ait été adsorbée de manière plus ou moins définitive sur les particules solides contenues dans le microcosme et que ce soit la vitesse de dissolution qui limite sa minéralisation (Alexander, 1994). Dans la présente étude, le pourcentage final de minéralisation a été posé comme étant la valeur maximale obtenue à la fin de la période d'échantillonnage.

3.1.3 Évaluation des propriétés physiques

Certaines propriétés physiques sont particulièrement importantes quand il s'agit d'employer un milieu filtrant tel que la tourbe. Ainsi les mesures de densité relative, de conductivité hydraulique, de masse volumique et de porosité ont été réalisées au département de génie minéral de l'École Polytechnique de Montréal.

3.1.3.1 Densité relative (G_s)

La densité relative des grains, en anglais le « specific gravity », correspond à la densité spécifique du solide par rapport à celle de l'eau. La détermination de ce paramètre pour la tourbe granulaire a été faite selon la méthode ASTM D 854 (1991) : « Standard Test Method for Specific Gravity of Soils ».

3.1.3.2 Conductivité hydraulique (K)

Les mesures de conductivités hydrauliques ont été effectuées à l'aide d'un perméamètre à charge constante, selon la méthode ASTM D-2434 (1974) : « Standard Test Method of Permeability of Granular Soils (Constant Head) ».

La conductivité hydraulique dépend du taux de saturation du milieu. En milieu insaturé, la conductivité hydraulique est toujours inférieure à celle en milieu saturé (Todd, 1980). Lorsque la tourbe granulaire est mise en contact avec de l'eau, elle met un certain temps à l'absorber. L'équilibre n'est donc pas instantané. De façon à déterminer la fourchette dans laquelle se trouve la conductivité hydraulique de la tourbe, selon que le milieu est saturé ou non, deux valeurs de conductivité hydraulique ont été obtenues. La première a été mesurée lorsque les granules venaient d'être mis en contact avec l'eau (saturation partielle) alors que la seconde a été mesurée après trois jours de trempage (saturation complète).

3.1.3.3 Porosité (n) et masse volumique (ρ)

Lors des essais de conductivité hydraulique, la porosité et la masse volumique de la tourbe granulaire dans le perméamètre ont aussi été mesurées.

La porosité peut s'obtenir à l'aide des équations 3.1 à 3.3 :

$$n = \frac{V_{\text{vides}}}{V_{\text{total}}} \quad (3.1)$$

avec
$$V_{\text{vides}} = V_{\text{total}} - V_{\text{tourbe sèche}} \quad (3.2)$$

et
$$V_{\text{tourbe sèche}} = \frac{M_{\text{tourbe sèche}}}{G_s} \quad (3.3)$$

où V_{total} correspond au volume du perméamètre (environ 4,2 L), $M_{\text{tourbe sèche}}$ est la masse de tourbe sèche pesée dans le perméamètre et G_s est la densité relative mesurée selon la méthode présentée précédemment (paragraphe 3.1.3.1).

Au cours de ces essais, deux masses volumiques apparentes ont aussi été mesurées : la première est associée à la tourbe granulaire légèrement humide (telle qu'on la reçoit du

fabricant) et l'autre est associée à la tourbe sèche (après avoir passé 48 heures dans un four à 105 °C).

Dans les deux cas, le calcul de la masse volumique se fait selon l'équation suivante :

$$\rho = \frac{\text{masse de l'échantillon de tourbe dans le perméamètre}}{\text{volume du perméamètre}} \quad (3.4)$$

3.2 CONCEPTION DES BIOFILTRES PILOTES

Une partie importante de la présente étude a été consacrée à l'élaboration et à la construction d'unités pilotes de biofiltration. Les biofiltres employés dans les essais de terrain font donc partie du « matériel » utilisé, mais sont aussi le « résultat » d'un travail conceptuel. La présente section présente donc les critères de conception fixés et les configurations de réacteurs choisies. La section suivante décrit plus en détails les biofiltres pilotes en tant que matériel employé lors de essais de terrain.

3.2.1 Critères de conception

Pour être viable, un système de traitement doit être performant sur plusieurs plans. Aussi, des critères ont-ils été établis afin de développer un système de biotraitement efficace (Tableau 3.3).

Tableau 3.3 : Critères de conception d'un nouveau système de biofiltration *in situ*

CRITÈRES PHYSIQUES DU MILIEU FILTRANT
Conductivité hydraulique importante
Absence de compaction
Stabilité des propriétés sur de longues périodes
CRITÈRES HYDRODYNAMIQUES
Absence de chemins préférentiels et de zones mortes
Écoulement piston
CRITÈRES DE TRAITEMENT
Importante activité de minéralisation
Fonctionnel à 10°C
Fonctionnel à de faibles concentrations en oxygène dissous
Prévention des pertes de COV à l'atmosphère

3.2.1.1 Critères physiques du milieu filtrant

La conductivité hydraulique (K) d'un milieu filtrant représente le volume d'eau souterraine qu'il peut laisser passer dans un temps donné à travers une section donnée (Todd, 1980). Avec une conductivité hydraulique élevée ($> 10^1$ m/an: Todd, 1980), d'importants débits (vitesses superficielles élevées) peuvent être imposés au lit de tourbe sans que le point de noyade ne soit atteint. Cela étant, on s'assure que les capacités du système de traitement ne seront pas limitées par ses propriétés mécaniques. Des propriétés physiques stables sont aussi importantes, puisqu'un système de biofiltration *in situ* doit pouvoir fonctionner sur de longues périodes sans entretien.

3.2.1.2 Critères hydrodynamiques

Un écoulement de type piston est désiré, car il permet généralement d'obtenir de plus hauts taux de conversion (biodégradation) par unité de volume de réacteur (Fogler, 1992). De plus, dans le cas d'eau souterraine très faiblement contaminée, ce type

d'écoulement permet d'assurer une concentration en substrat suffisante à l'entrée pour stimuler la croissance bactérienne. Il est évident que les chemins préférentiels et les zones mortes au sein des biofiltres sont à éviter, puisqu'ils diminuent leur efficacité en rendant certaines parties du milieu filtrant inaccessibles.

3.2.1.3 Critères de traitement

Le but d'un système de biofiltration est de permettre l'enlèvement des contaminants de l'eau souterraine par leur biodégradation complète. Une importante activité de minéralisation au sein de la tourbe granulaire est donc visée, puisqu'il s'agit de la cinétique de réaction prenant place dans le bioréacteur.

De façon générale, les eaux souterraines du Québec ont une température moyenne de 10 °C et contiennent assez peu d'oxygène dissous. Les biofiltres doivent pouvoir opérer dans ces conditions tout en assurant une efficacité de traitement.

Enfin, comme les BTEX sont des composés très volatils, il importe de s'assurer que la disparition des contaminants en phase liquide ne se fasse pas par volatilisation, mais bien par biodégradation. À cette fin, les biofiltres conçus devront empêcher la libération d'hydrocarbures légers à l'atmosphère en minimisant les pertes par volatilisation et en traitant les composés en phase gazeuse avant leur rejet.

3.2.2 Configurations choisies

De manière à développer la meilleure unité de biofiltration possible, deux types de biofiltres ont été conçus : un en mode percolation et l'autre en mode saturé à courant ascendant, parce que tout deux semblaient posséder des avantages intéressants. Cependant, les deux configurations envisagées avaient aussi des limites. Le premier travail d'optimisation était donc de déterminer, par des essais pilotes, lequel des deux

designs était préférable. Les avantages et limites de chacune des configurations sont présentés dans les paragraphes qui suivent et résumés au Tableau 3.4.

Tableau 3.4 : Avantages et inconvénients des deux configurations de biofiltres

	Avantages (+) /Inconvénients(-)
Percolation	<p>Favorise les contacts air/eau</p> <ul style="list-style-type: none"> + augmente la concentration en oxygène dissous - favorise la volatilisation des contaminants <p>Système de distribution nécessaire</p> <ul style="list-style-type: none"> - difficile à faibles débits - risque d'entretien nécessaire
Saturé/courant ascendant	<ul style="list-style-type: none"> + aucun système de distribution nécessaire + meilleur contact entre l'eau contaminée et la tourbe granulaire - moins d'oxygène dissous disponible

3.2.2.1 Écoulement en percolation et choix du type de distribution

Dans un biofiltre en percolation, l'eau s'égoutte librement à travers le milieu filtrant. À cause de ce type d'écoulement, la surface de contact air/eau disponible pour les échanges est augmentée, permettant d'améliorer les concentrations en oxygène dissous dans l'eau à traiter. Il s'agit d'un facteur important, puisque la biodégradation des BTEX en conditions aérobies est beaucoup plus rapide qu'en présence de tout autre accepteur d'électron (Cookson, 1995). Par ailleurs, le mode d'alimentation en percolation favorise aussi la volatilisation des contaminants, ce qui n'est pas intéressant, puisque la dégradation en phase liquide est désirée.

De manière à obtenir un biofiltre en percolation performant, un bon système de distribution liquide doit aussi être mis en place. Or, il est relativement difficile

d'obtenir une distribution uniforme à de faibles débits (Bonilla, 1993). De plus, en conditions de terrain, le distributeur de débit risque de se colmater et de nécessiter un entretien régulier, ce qui augmente les coûts d'opération d'un système.

Une bonne distribution du liquide est essentielle à la bonne performance d'un réacteur en percolation. Dans le cas d'une colonne à garnissage, Bonilla (1993) mentionne qu'une distribution inégale se traduit par une diminution de l'efficacité de la colonne et une augmentation de la hauteur équivalent à un étage théorique. De plus, il semble qu'un garnissage ayant une grande surface spécifique est plus sensible à une mauvaise distribution initiale que ceux ayant une faible surface spécifique. Comme la tourbe granulaire est extrêmement poreuse, elle devrait faire partie de la première catégorie. Aussi, l'importance du distributeur ne devait pas être sous-estimée.

Le choix d'un distributeur dépend du débit de liquide, de sa tendance à colmater ou à s'encrasser, de la nature du courant alimenté et de nombreux autres facteurs. Il existe quatre classes de distributeurs (Bonilla, 1993) :

1. Distributeurs à plaque perforée (« Pan distributors »), alimentation gravitaire;
2. Distributeurs à cannelures (« Narrow trough distributors »), alimentation gravitaire;
3. Distributeurs à conduites perforées (« Pipe orifice distributors ») alimentation gravitaire ou sous pression;
4. Gicleurs (« Spray nozzles »), alimentation sous pression.

Avec les gicleurs, certains problèmes pouvaient être envisagés. D'abord, comme l'eau souterraine contient souvent des matières en suspension (MES), des grains de sable ou d'autres particules provenant de l'aquifère auraient facilement pu boucher les petits

orifices du système. Ensuite, les gicleurs envoient le liquide en de très fines gouttelettes, ou en bruine, ce qui aurait favorisé la volatilisation d'une grande partie des hydrocarbures légers (dont les BTEX) avant même que l'eau n'entre en contact avec le lit filtrant. Pour ces raisons, il était préférable d'écarter ce type de distributeur.

Habituellement, les conduites perforées représentent la meilleure méthode pour distribuer un liquide à faible débit sur la surface d'un lit (Bonilla, 1993). Sachant cela, un distributeur en « H », fait de tuyau de PVC (1,3 cm DI) et percé de 15 trous, a été conçu pour tenter de répartir le liquide sur la plus grande surface possible. Cependant, à cause de la faible pression du courant alimenté, une distribution uniforme était difficile à obtenir. Pour améliorer l'étalement de l'eau contaminée sur toute la section du biofiltre, une plaque de Plexiglas perforée a été ajoutée. Le nombre d'orifices sur la plaque perforée a été calculé à l'aide de l'équation de Bernouilli (CRANE, 1988). Le détail des calculs est présenté à l'annexe F.

3.2.2.2 Écoulement saturé ascendant

Dans un biofiltre saturé à courant ascendant, aucun système de distribution n'est nécessaire, ce qui présente un avantage du point de vue de la conception et de l'entretien. De plus, parce que le milieu filtrant est complètement saturé, la surface de contact entre la tourbe granulaire et l'eau souterraine contaminée est augmentée, ce qui permettrait de supposer que l'efficacité de biodégradation serait aussi augmentée (Satterfield, 1975).

Par contre, la saturation du milieu filtrant est un facteur qui n'aide pas à l'aération de l'eau souterraine et à l'augmentation de la concentration en oxygène dissous. Par ailleurs, le fait que l'eau contaminée ne soit pas « brassée » outre mesure minimise la volatilisation des hydrocarbures légers, laissant la majorité des contaminants en phase liquide.

Considérant les avantages et les inconvénients des types de biofiltres envisagés, les deux configurations ont été construites afin d'être testées sur le terrain.

3.2.3 Description des biofiltres pilotes

Les deux configurations étant étudiées en duplicata, quatre biofiltres pilotes de 200 L ont été construits à partir de barils de plastique modifiés. Les barils employés comme structure de base étaient faits de polyéthylène haute densité (HDPE). Un schéma illustrant les dimensions et composantes principales des biofiltres pilotes est présenté à la Figure 3.3, tels qu'ils se trouvaient au début des essais de terrain.

La hauteur totale d'un biofiltre était de 85 cm et son diamètre moyen de 58 cm (entre 56 et 60 cm dépendant de la hauteur). L'épaisseur des parois était de 2.2 mm. Dans chaque unité, 20 L de gravier (de diamètre ≤ 2 cm) ont été étendus dans le fond pour améliorer la distribution du liquide et empêcher les particules de tourbe de bloquer la tuyauterie. Au-dessus de ce gravier, un grillage (moustiquaire de plastique) a été placé pour minimiser le mélange entre le gravier et la tourbe granulaire et ainsi faciliter les vidanges éventuelles des biofiltres. Enfin, environ 155 L de tourbe granulaire a été ajouté pour constituer le milieu filtrant.

Les systèmes d'alimentation et de sortie des unités étaient faits de tuyaux de PVC (grade eau potable) de 1.3 cm de diamètre. Un couvercle étanche refermait le dessus des barils.

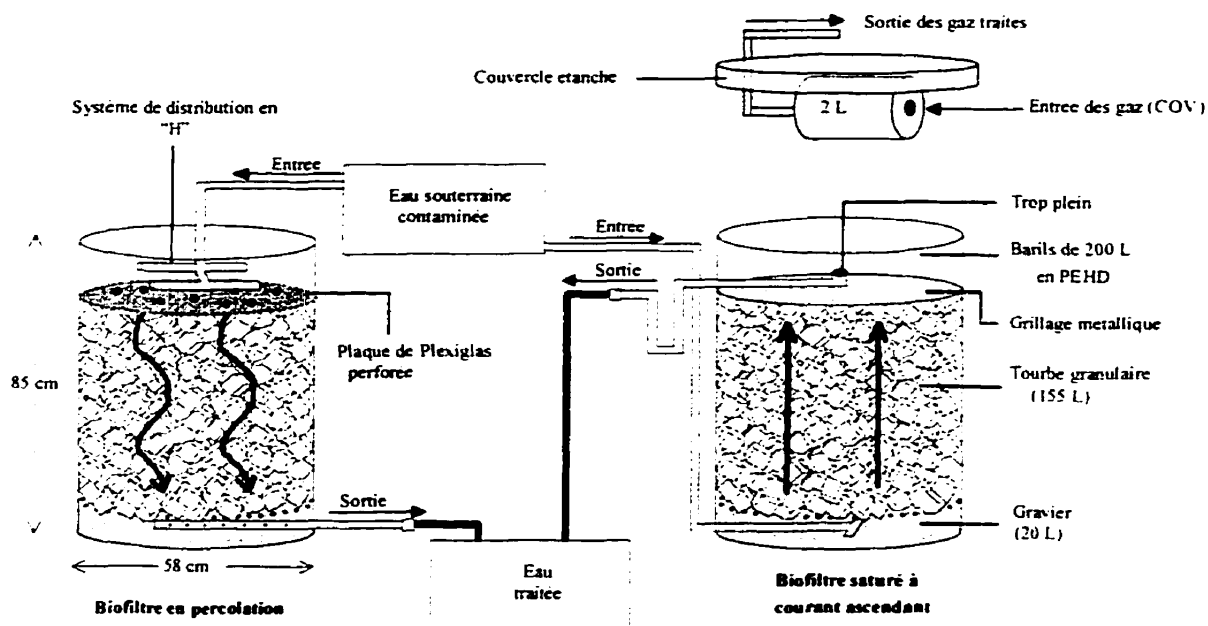


Figure 3.3 : Schéma des biofiltres pilotes au début des essais de terrain.

3.2.3.1 Biofiltre en percolation

Dans la configuration en percolation, deux éléments ont été fabriqués pour distribuer l'eau à la surface du milieu filtrant. D'abord, l'eau contaminée était alimentée dans le haut de l'unité par un distributeur en forme de « H » fait de tuyaux de PVC (grade eau potable) de 1.3 cm (DI), percé de 15 trous de 3 mm et fixé au couvercle du biofiltre. Une plaque de Plexiglas (3 mm d'épaisseur et 58 cm de diamètre), perforée de 20 trous de 3 mm de diamètre, était déposée sur le milieu filtrant. La sortie de l'eau traitée se faisait au bas de l'unité par un tuyau perforé situé sous la couche de gravier.

Pour s'assurer que l'eau ne saturait pas le milieu filtrant, un piézomètre fait d'un tuyau de PVC transparent a été installé sur la paroi extérieure des unités. Son extrémité inférieure était connectée au niveau du gravier alors que son extrémité supérieure était reliée à l'espace de tête (30 cm) se trouvant au-dessus de la tourbe granulaire.

3.2.3.2 Biofiltre saturé avec écoulement ascendant

Dans le biofiltre saturé à courant ascendant, l'eau contaminée était alimentée par le bas de l'unité, au centre du biofiltre, dans le gravier. La sortie se faisait par un trop plein placé au centre du baril. Un grillage était placé sur le dessus du milieu filtrant pour retenir les granules de tourbe et les empêcher de bloquer le trop-plein. Un « U » dans la tuyauterie de sortie empêchait les gaz d'entrer ou de sortir par le trop plein.

3.2.3.3 Système de traitement des COV

Un système de traitement des composés organique volatils (COV) était inclus dans chacune des unités de biofiltration pour empêcher le rejet d'hydrocarbures gazeux à l'atmosphère. De petits biofiltres de 2 L, fabriqués à partir de connecteurs en ABS (10.2 cm de diamètre) et remplis d'un mélange organique, étaient fixés aux couvercles. Comme aucune autre issue n'était disponible pour les gaz, toutes les émanations produites devaient passer par ce petit biofiltre avant de se retrouver à l'atmosphère. La photographie d'un de ces biofiltres à COV est présentée à l'annexe C.

Le mélange organique servant de milieu filtrant pour la biofiltration des gaz était principalement constitué de tourbe de sphaigne nettoyée (55 % v/v) (Les tourbières Premier, Rivière-du-Loup, Québec), de fumier de caille composté (15 % v/v) (Fafard et frères Ltée, St-Guillaume, Québec) et de copeaux de bois d'érable (15 % v/v). Ces trois composantes servaient de support pour les micro-organismes, de source de nutriments et de matériau structurant pour diminuer la densité et la compaction du milieu filtrant respectivement. Le milieu a étéensemencé avec du sol contaminé au diesel fourni par AES (Laterrière, Québec) (12.5 % v/v) pour l'ajout de micro-organismes dégradant les composés de l'essence, et un peu de chaux (2,5 % v/v) a été ajoutée pour empêcher l'acidification du milieu. Ce type de milieu filtrant a déjà fait ses preuves relativement au traitement d'effluents gazeux contaminés aux BTEX (Tahraoui *et al.*, 1995).

3.3 ESSAIS DE TERRAIN

Les biofiltres pilotes ont été installés sur un site d'une importante compagnie pétrolière à Trois-Rivières. La description du site, de l'eau souterraine à traiter et des installations est présentée dans les paragraphes qui suivent.

3.3.1 Description du site

Le site où ont eu lieu les essais de biofiltration est un ancien dépôt pétrolier, situé près du port de Trois-Rivières, à proximité de plusieurs autres compagnies pétrolières. L'eau souterraine y est donc fortement contaminée, probablement par plusieurs sources (anciennes et actuelles). Pour minimiser la migration de la contamination à l'extérieur de son site, la compagnie pétrolière a eu recours aux services de SNC-Lavalin. Ces derniers ont installé une tranchée de récupération connectée à un puits de captage. Une pompe, placée dans le puits, envoie l'eau souterraine contaminée à un bassin aéré en surface. L'eau est ensuite retournée en amont de la tranchée dans une galerie d'infiltration, formant un circuit en boucle « fermée ». En plus du pompage de l'eau, un système de récupération de la phase flottante d'hydrocarbures est aussi en fonction. Des plans du site sont fournis à l'annexe E. Des photographies du terrain sont aussi présentées à l'annexe C.

3.3.2 Caractéristiques de l'eau souterraine à traiter

L'eau souterraine qui alimentait les biofiltres provenait du puits de captage, sous la phase libre. Sa composition est présentée au Tableau 3.5.

Les valeurs indiquées au Tableau 3.5 sont des moyennes établies à partir de plusieurs analyses effectuées à divers moments au cours des essais de terrain. Un écart-type d'environ 30 % a été noté sur les concentrations de BTEX. Pour les autres paramètres,

la variabilité était moins importante et une erreur de 10 % a été estimée pour tenir compte des aléas d'échantillonnage et d'analyse. Il est à noter que tous les résultats d'analyses sont fournis à l'annexe G.

Tableau 3.5 : Composition de l'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières

PARAMÈTRE	LIMITE DE DÉTECTION	VALEUR	CRITÈRES EAU DE SURFACE (µg/L) ^a
<u>BTEX totaux</u>	---	10 000 µg/L	---
Benzène	0,5	2700 µg/L	590
Toluène	0,4	2300 µg/L	200
Éthylbenzène	0,3	620 µg/L	420
Xylènes	0,3	4300 µg/L	820
<u>C₁₀-C₅₀ totaux</u>	0,05	3 mg/L	3 500
C ₁₀ -C ₂₀	0,05	3 mg/L	---
C ₂₀ -C ₃₀	0,05	< LD	---
C ₃₀ -C ₄₀	0,05	< LD	---
C ₄₀ -C ₅₀	0,05	< LD	---
<u>Autres paramètres</u>			
N-NH ₄ (en N)	0,03	2 mg/L	---
NO ₂ - NO ₃ (en N)	0,2	< LD	---
PO ₄ (en P)	0,2	< LD	3 000
Fe total	0,02	35 mg/L	---
SO ₄ ²⁻	0,2	1 mg/L	---
Calcium	0,1	120 mg/L	---
MES	5	50 mg/L	---
Oxygène dissous	---	0,4 mg/L	---
Température	---	13,5 °C	---
pH	---	6,65	---

^a : Critères génériques du MEF (Gouvernement du Québec, 1998b; Annexe A).

LD : limite de détection

L'observation du Tableau 3.5 permet de constater que les concentrations en BTEX dans l'eau souterraine à traiter (B : 2 700 µg/L; T : 2 300 µg/L; E : 620 µg/L et

X : 4 300 µg/L) étaient de beaucoup supérieures aux critères du MEF pour les eaux de surface (Gouvernement du Québec, 1998b; annexe A). En effet, les concentrations prescrites par le ministère sont de 590 µg/L pour le benzène, 200 µg/L pour le toluène, 420 µg/L pour l'étylbenzène et 820 µg/L pour tous les isomères du xylène confondus. Ainsi, dans le cas où l'eau souterraine puisée aurait été rejetée en surface, jusqu'à 10 fois trop de contaminants (en particulier le toluène) y aurait été présents.

Pour ce qui est des hydrocarbures pétroliers (C₁₀-C₅₀ totaux), jusqu'à 3,5 mg/L sont permis par le MEF dans les eaux de surface. La concentration retrouvée dans l'eau souterraine à traiter (3 mg/L) n'était donc pas excessivement élevée.

Une des caractéristiques importantes de l'eau à traiter était sa concentration anormale en fer. En effet, alors que la concentration moyenne de fer dans les eaux souterraines du Québec est de 0,08 mg/L (Simard et Des Rosiers, 1980), l'eau souterraine en contenait 35 mg/L. Cette caractéristique a grandement influencé les essais de terrain et sera discuté à plusieurs reprises ultérieurement.

Enfin, les autres paramètres sont assez représentatifs des eaux souterraines du Québec, puisque toutes les concentrations mesurées sont près des moyennes présentées dans le Tableau 2.1 : Composition physico-chimique des eaux souterraines du Québec (Simard et Des Rosiers, 1980).

3.3.3 Description des installations (montage expérimental)

Bien que le concept visé (section 1.3) veuille que les biofiltres soient situés dans la zone vadose, les unités pilotes ont été installées en surface de manière à faciliter le suivi des paramètres de même que les modifications qui pouvait être apportées en cours d'expérimentation.

Le montage expérimental, tout comme les biofiltres, a été modifié à quelques reprises au cours des essais de terrain. Le montage, tel qu'il se trouvait à la fin des essais de terrain, est illustré à la Figure 3.4. Les modifications apportées au système dans le temps seront justifiées à la section 4.2.

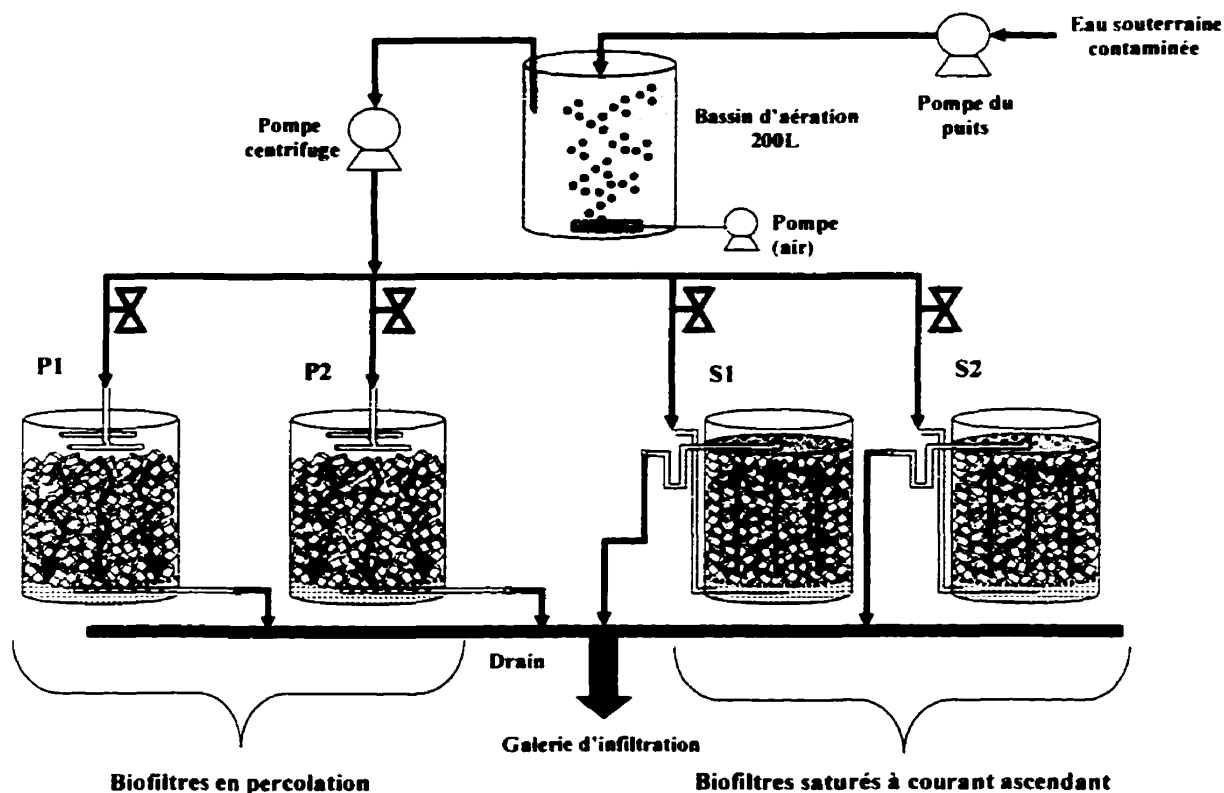


Figure 3.4 : Schéma du montage expérimental de terrain.

L'eau provenant du puits de captage était d'abord envoyée à un bassin de rétention de 200 L. De ce réservoir, deux pompes péristaltiques Masterflex (modèle 7520-25, Cole-Parmer Instrument Co., Barrington, IL, USA) à deux têtes standards (modèle 7018-20) alimentaient les quatre biofiltres à un débit constant de 1,8 L/min. La tuyauterie reliant le bassin aux pompes et les pompes aux biofiltres était faite de PVC flexible (0,8 cm DI). Enfin, l'eau sortant des biofiltres était dirigée vers un drain et renvoyée dans la galerie d'infiltration en amont de la tranchée de récupération.

Après six semaines d'essais, un système d'aération a été installé dans le bassin de rétention. Un diffuseur d'air (Aquafizzz, 15 cm, Rolf C. Hagen, Montréal, Québec) branché à une pompe d'aquarium Optima (Rolf C. Hagen, Montréal, Québec) servait à augmenter les concentrations en oxygène dissous à la sortie du réservoir tampon. Le débit d'alimentation en air était de 5500 cm³/min.

À la 13^{ième} semaine d'opération, les pompes péristaltiques ont été remplacées par une pompe centrifuge submersible Burke (modèle 300309P, Les pompes Bur-Cam inc., St-Laurent, Québec). Cette dernière a été placée dans le bassin de rétention. À la sortie, le courant était divisé en quatre et des vannes devaient assurer une répartition égale du débit vers chaque biofiltre.

Diverses photographies des installations sont présentées à l'annexe C.

3.3.4 Suivi de la biofiltration en continu

Pour effectuer le suivi de la biofiltration en continu dans les unités pilotes, un plan a été élaboré (Tableau 3.6).

Tableau 3.6 : Plan de suivi des essais de terrain

	1x/sem	début/fin (07/98 – 12/98)
<u>EAU SOUTERRAINE :</u>		
BTEX	X	
Oxygène dissous	X	
Température	X	
pH	X	
Débits	X	
<u>TOURBE GRANULAIRE :</u>		
COT		X
NO ₂ -NO ₃		X
N-NH ₄		X
PO ₄		X
<u>AIR :</u>		
COV		X

Une fois par semaine, une visite était faite sur le site. Lors de cette visite, des échantillons d'eau pour l'analyse des BTEX et des mesures d'oxygène dissous, de température, de pH et de débits étaient pris dans l'eau souterraine à l'entrée et à la sortie des quatre biofiltres. La tourbe granulaire a été analysée au début (tourbe neuve) et à la fin des essais, lorsque les biofiltres ont été démantelés. Les analyses de BTEX de même que les résultats des mesures régulières sont présentés à l'annexe G.

3.3.5 Méthodes d'échantillonnage, d'analyses et de mesures

Les méthodes d'échantillonnage d'eau pour les analyses de BTEX et d'autres paramètres sont détaillées dans le protocole PE-19F (annexe D). Les analyses ont été effectuées par un laboratoire externe (Philip Services Corp., Anjou, Québec). Les méthodes analytiques de référence employées par ce laboratoire proviennent de publications telles que « Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater », 18^{ième} éd. et toutes autres publications reconnues par des organismes tels que le MEF et l'EPA. Dans le cas de la quantification des BTEX pour les sols et l'eau, la méthode employée était : Détermination des composés organiques par « Purge and Trap » (GC/MS) (EPA 624, EPA 8240, et MENVIQ.88.01/408 HMA 1.1).

Les mesures d'oxygène dissous et de température étaient prises dans un Erlenmeyer alimenté en continu en eau avec un analyseur YSI (modèle 58, Yellow Springs Instrument Co. Inc., Yellow Springs, OH) et un thermomètre à mercure respectivement. Pour déterminer le pH, des échantillons de 20 mL provenant de chacun des courants étaient prélevés et mesurés en laboratoire avec un pH-mètre Accumet® (modèle 25, Fisher Scientific, Denver Instrument Co., USA) muni d'une sonde Orion PerpHecT (Orion, Beverly, MA, USA). Enfin, les débits étaient mesurés à l'entrée de chacun des biofiltres à l'aide d'un ballon jaugé de 2 L et d'un chronomètre.

Tout comme les BTEX et les hydrocarbures pétroliers, les analyses sur la tourbe granulaire ont toutes été effectuées par un laboratoire externe (Philip Services Corp., Anjou, Québec). Pour la mesure du carbone organique total (COT), 0.5 g de solide était d'abord séché à 105 °C, tamisé à 40 Mesh, puis séché de nouveau. La méthode de mesure employée par la suite était basée sur les spécifications de l'analyseur LECO (TOC-SBAR), impliquant une combustion à 950 °C. Les analyses des nitrite-nitrate ($\text{NO}_2\text{-NO}_3$) et orthophosphate (PO_4) étaient effectuées selon la méthode de « Détermination des anions par chromatographie ionique » (MENVIQ. 89.07/304-lons 1.1) et celles de l'azote ammoniacal (N-NH_4) selon la méthode de « Détermination d'azote ammoniacal par électrode spécifique » (Standard Methods, 4500-NH3.F).

Afin de connaître la quantité d'hydrocarbures volatilisés, une mesure des COV libérés devait être effectuée à l'entrée et à la sortie de chacun des petits biofiltres servant au traitement de l'air. Les COV étaient capturés à l'aide d'ampoules de charbon activé (tubes ORBO 32, 200-400 mg, Supelco, Bellefonte, PA, USA) et analysés par un laboratoire externe (Philip Services Corp., Anjou, Québec) selon la méthode U.S. EPA : TO1 – « Détermination des COV dans l'air ambiant par adsorption sur Terrax ® et chromatographie en phase gazeuse (GC/MS) ».

3.4 SUIVI DE L'ACTIVITÉ MICROBIENNE

Le suivi de la capacité de dégradation des BTEX par la tourbe granulaire a été réalisé à l'aide de microcosmes et de comptes microbiens à divers moments au cours des essais de biofiltration sur le terrain. Dans la section qui suit, une description générale des essais en microcosmes réalisés dans le temps sera réalisée. Par la suite, certains essais plus spécifiques seront expliqués. Entre autres, des essais en microcosmes ont été effectués pour vérifier l'effet de la présence du fer et pour déterminer l'apport des

différentes populations microbiennes sur le traitement. Enfin, la méthode employée pour effectuer les comptes microbiens sera présentée.

3.4.1 Suivi de la minéralisation dans le temps

Après 0, 8, 14 et 22 semaines de biofiltration, des tests de minéralisation en microcosmes ont été réalisés avec de la tourbe issue des biofiltres et de l'eau souterraine provenant du site. Le principal objectif de ces essais était de suivre la capacité de minéralisation des BTEX par les micro-organismes de la tourbe granulaire en fonction du temps.

Chacun des microcosmes était constitué d'une bouteille sérologique de 120 mL contenant $10,75 \pm 0,01$ g (environ 20 mL) de tourbe granulaire mouillée (provenant des biofiltres, 80 % hum.) émietlée et $80,0 \pm 0,5$ mL d'eau souterraine du terrain. La préparation des microcosmes et le suivi de la minéralisation en conditions aérobies ont été effectués selon la méthode décrite à la sous-section 3.1.2 : Évaluation préliminaire de l'activité biologique en microcosmes.

Les premiers essais ont été réalisés avec du toluène radiomarké, pour faciliter la comparaison avec les résultats de Forget (1997). Cependant, des essais ont aussi été effectués avec les six composés BTEX (benzène, toluène, éthylbenzène, *o*-, *m*- et *p*-xylène). Les composés employés étaient tous uniformément marqués au carbone-14 au niveau de l'anneau benzénique. Le benzène (58,2 mCi/mmol, pureté ≥ 98 %), le toluène (60 mCi/mmol, pureté ≥ 98 %), le *m*-xylène (0,06 mCi/mmol, pureté ≥ 96 %), le *o*-xylène (1,8 mCi/mmol, pureté ≥ 96 %) et le *p*-xylène (0,15 mCi/mmol, pureté ≥ 96 %) étaient fournis par Sigma Chemicals (St-Louis, MO, USA). L'éthylbenzène (2 mCi/mmol, pureté = 99,47 %) était obtenu de la compagnie Wizard Laboratories, Inc. (West Sacramento, CA, USA). Pour obtenir l'activité finale désirée

(équivalent à 100 000 dpm/0,4 µL), la solution mère était diluée avec du composé non marqué de pureté supérieure à 99,9 % (Anachemia Chemicals, Montréal, Québec).

Dans tous les essais réalisés, une concentration initiale de 4,3 mg/L de contaminant était injectée dans l'eau des microcosmes. En tout, 18, 36 et 24 microcosmes ont été suivis après 8, 14 et 22 semaines respectivement. Les détails de ces expériences sont présentés à l'annexe D dans les protocoles PE-19G (essais avec du ^{14}C -toluène, après 0 et 8 semaines), PE-19H (essais avec tous les BTEX radiomarqués, après 14 semaines) et PE-19J (essais avec de ^{14}C -*p*-xylène, après 0 et 22 semaines).

3.4.2 Effet de l'oxyde de fer sur la biodégradation

À la 8^{ème} semaine d'opération, une quantité non négligeable d'oxyde ferrique s'était accumulée dans les biofiltres, autour des granules de tourbe. Pour vérifier l'effet de cette accumulation sur l'activité des micro-organismes, deux séries de microcosmes supplémentaires ont été préparées : la première contenait de la tourbe sans aucune trace de fer et la seconde contenait de la tourbe particulièrement colmatée par de l'oxyde ferrique. Dans les deux cas, les granules provenaient des biofiltres en percolation après 8 semaines de traitement. Tout le reste de la préparation des microcosmes et du suivi est tel que décrit plus haut. Les détails de cet essai se trouvent dans le protocole PE-19G (Annexe D).

3.4.3 Apport des diverses populations bactériennes sur le traitement

Lors du démantèlement des biofiltres, après 22 semaines d'opération sur le terrain, des essais de minéralisation ont été effectués dans le but de départager les effets des différentes flores microbiennes sur la dégradation du *p*-xylène. Les sources de micro-organismes à l'étude étaient :

1. **la tourbe granulaire neuve**, ou les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire.
2. **la tourbe granulaire acclimatée**, i.e. la tourbe se trouvant dans les biofiltres sur le terrain et ayant servi à la biofiltration d'eau souterraine contaminée et préalablement aérée. Cette tourbe a donc accumulé des dépôts minéraux et métalliques (principalement de l'oxyde de fer) et des matières en suspension, telles des agrégats de biomasse qui se développent dans le bassin d'aération et dans les tuyaux d'alimentation. Il s'agit donc des micro-organismes indigènes acclimatés et bioaugmentés.
3. **l'eau souterraine du puits**, ou les micro-organismes indigènes de l'aquifère contaminé.
4. **l'eau souterraine du bassin d'aération**, ou les micro-organismes indigènes de l'aquifère, stimulés par l'aération

Pour comparer ces différentes flores, des stérilisations sélectives (tourbe seulement ou eau seulement) ont été faites par autoclavage. Les témoins abiotiques de chacune des séries contenaient à la fois de l'eau souterraine stérilisée et de la tourbe stérilisée. Aucun ajout d'azoture de sodium n'a été effectué dans ces témoins, car ils devaient permettre de s'assurer de l'efficacité des stérilisations.

Pour ne pas avoir à ajouter un tampon dans l'eau et pour ne pas qu'un abaissement de pH n'affecte les micro-organismes, la tourbe neuve employée dans la série 1 a été lavée en continu pendant 14 jours avec de l'eau distillée, dans une colonne à courant ascendant.

Lors de ces essais, le *p*-xylène a été choisi comme contaminant. Ce choix faisait suite aux observations notées lors de la comparaison des résultats de minéralisation de tous les BTEX par les micro-organismes de la tourbe neuve (résultats d'Annick Tétreault, étudiante à la Chaire CRSNG en bioprocédés d'assainissement des sites) et de la tourbe acclimatée (Martineau *et al.*, 1999). En effet, les isomères du xylène n'étaient pas minéralisés par la tourbe granulaire neuve ou alors les courbes présentaient d'importants temps de latence. Ainsi, pour mieux percevoir une acclimatation des micro-organismes, le choix du contaminant s'est arrêté sur le *p*-xylène.

Les essais ont été réalisés dans des bouteilles en verre ambré de 500 mL. Ce nouveau format de microcosme permettait, d'une part, d'y entrer des cubes de tourbe entiers pour mieux représenter le contact réel eau/micro-organismes/tourbe retrouvé dans les biofiltres pilotes. D'autre part, le verre ambré permettait de minimiser les pertes de contaminants par photo-dégradation sans avoir à couvrir les bouteilles lors de l'incubation à 10°C.

Chacune des bouteilles était remplie avec 150 ± 1 g (environ 15 cubes) de tourbe granulaire humide (80 % hum.) et 250 ± 1 mL d'eau souterraine. À cause du volume d'eau plus important, 1,5 μ L de *p*-xylène radiomarké (67 kdpm/ μ L; 0.15 mCi/mmol, pureté ≥ 96 %, Sigma Chemicals, St-Louis, MO, USA) était injecté dans chacun des microcosmes pour obtenir une concentration initiale de 4,3 mg/L de contaminant comme dans les essais précédents. Enfin, les bouteilles étaient refermées à l'aide d'un bouchon doublé de Téflon sur lequel une valve Mininert (Supelco, Bellefonte, PA, USA) était installée. Ainsi, le suivi de la minéralisation en conditions aérobies a été effectué sur 16 microcosmes selon la méthode décrite à la sous-section 3.1.2.

Les détails sont présentés dans le protocole PE-19J (Annexe D).

3.4.4 Dénombrement total des micro-organismes hétérotrophes

Une autre façon de mesurer l'activité microbienne dans un milieu est de déterminer le nombre total de micro-organismes hétérotrophes présents. Afin d'estimer la densité moyenne de micro-organismes hétérotrophes, la méthode du "nombre le plus probable" (NPP) a été employée. Le principe de la méthode et les manipulations à effectuer sont décrites dans le protocole standard PSO-A12 (Annexe D).

3.5 SUIVI DU COMPORTEMENT HYDRODYNAMIQUE

En plus de la capacité de dégradation des contaminants, un bon biofiltre doit posséder des propriétés hydrodynamiques intéressantes et constantes dans le temps. Ainsi, pour déterminer l'effet du vieillissement des biofiltres sur les caractéristiques physiques et hydrodynamiques du milieu filtrant, une étude hydrostatique et un essai de traçage en conditions dynamiques ont été effectués au départ et après 19 semaines de biofiltration sur le terrain.

3.5.1 Étude hydrostatique : détermination des rétentions

L'étude hydrostatique fait référence aux propriétés du milieu filtrant en l'absence d'écoulement de fluide. Parmi ces propriétés se trouvent les rétentions solide, liquide et gazeuse, correspondant chacune à une phase du biofiltre. La définition des rétentions est donnée ici (Bélanger, 1994) :

1. la rétention solide (ϵ_s) représente le rapport du volume des solides (la tourbe) excluant le volume des pores, sur le volume total du lit ;

2. en mode de percolation, le gaz s'écoule dans une partie des espaces entre les particules qui correspondent à la rétenion gazeuse (ϵ_g) ;
3. la rétenion liquide (ϵ_L) se subdivise comme suit :
 - a) la rétenion liquide statique (ϵ_{Ls}) qui représente le liquide interne capturé à l'intérieur des pores de la tourbe et non drainable et le liquide externe non drainable, retenu entre les particules par capillarité (il constitue moins de 5 % de cette phase) ;
 - b) la rétenion liquide dynamique (ϵ_{Ld}) représente le liquide externe s'écoulant à l'extérieur des particules solides. On pourrait aussi parler d'eau « libre ».

La détermination des différentes rétentions en conditions statiques a été faite en mode submergé, tel que décrit par Bélanger (1994), avec de la tourbe neuve et de la tourbe ayant passé 22 semaines dans les biofiltres. Les étapes suivies sont résumées ici, mais les détails de cet essai sont fournis dans le protocole PE-19C à l'annexe D.

L'essai, réalisé en triplicata, demandait à ce que trois béciers de 2 L (V_{total}) soient remplis d'une masse connue de tourbe granulaire sèche ($M_{sèche}$), puis saturée (jusqu'à la ligne du 2 L) avec un volume connu d'eau (V_{eau}). Après plusieurs jours de repos (pour permettre la saturation complète des granules de tourbe) le liquide contenu dans les béciers a été drainé et le volume d'eau recueilli ($V_{drainé}$) a été noté.

À partir de ces mesures, les rétentions liquides statique (ϵ_{Ls}) et dynamique (ϵ_{Ld}) ont pu être calculées (équations 3.5 et 3.6).

$$\epsilon_{Ls} = \frac{(V_{eau} - V_{drainé})}{V_{total}} \quad (3.5)$$

et

$$\varepsilon_{Ld} = \varepsilon_g = \frac{V_{drainé}}{V_{total}} \quad (3.6)$$

Il est à noter qu'en mode submergé, la rétention liquide dynamique (ε_{Ld}) est en fait égale à la rétention gazeuse du lit filtrant. Enfin la rétention solide (ε_s) est calculée à partir de la masse sèche ($M_{sèche}$) de la tourbe et de sa densité spécifique ($G_S \cdot \rho_{eau}$) (équation 3.7).

$$\varepsilon_s = \frac{M_{sèche}}{G_{S,tourbe} \cdot \rho_{eau} \cdot V_{total}} \quad (3.7)$$

Chacune des rétentions étant une fraction du volume total du lit de tourbe, leur somme doit évaluer l'unité. Il est aussi possible de déterminer la porosité du milieu, tel que décrit au paragraphe 3.1.3.3.

3.5.2 Étude du comportement hydrodynamique

L'écoulement du liquide au sein des biofiltres a été étudié au départ et après 19 semaines de biofiltration sur le terrain à l'aide d'essais de traceur.

3.5.2.1 Théorie sur la distribution des temps de séjour (DTS)

La description et la caractérisation des réacteurs idéaux (parfaitement mélangés et en écoulement piston) sont des concepts maintenant bien connus. Malheureusement, dans la vie de tous les jours, les réacteurs ne se comportent pas de manière idéale. Pour caractériser ces réacteurs non idéaux, les approches employées sont très peu nombreuses. En fait, trois concepts sont employés : la distribution des temps de séjour (DTS) dans le système; la qualité du mélange (qui s'applique aux réacteurs mélangés) et différents modèles servant à décrire le système (Fogler, 1992). Dans le présent

projet, la DTS a été choisie pour estimer le profil d'écoulement au sein des biofiltres pilotes, étant donné qu'il s'agit d'une méthode simple qui permet d'obtenir plusieurs informations utiles.

De façon générale, la DTS est déterminée expérimentalement en injectant un traceur à l'entrée du réacteur à un temps 0, puis en mesurant la concentration du traceur à sa sortie en fonction du temps. Le traceur employé doit être non réactif, facilement détectable et avoir des propriétés physiques semblables à celle du fluide étudié. De plus, il ne doit pas s'adsorber aux parois du réacteur et, par-dessus tout, son comportement doit être représentatif de celui du fluide s'écoulant dans le réacteur (Fogler, 1992).

La fonction de DTS, aussi appelée la courbe « $E(t)$ », est obtenue en normalisant la courbe de concentration en fonction du temps de manière à ce que l'aire sous la courbe soit égale à l'unité (Levenspiel, 1972). Pour caractériser la distribution obtenue, la moyenne et la variance de la courbe (aussi appelée premier et second moments), sont généralement calculées. Lorsque la concentration de traceur n'est connue qu'à un nombre discret de temps t_i , les équations 3.8 et 3.9 sont employées pour déterminer le temps de résidence moyen (τ) de l'eau dans le réacteur et la variance (σ^2) ou l'étalement de la courbe (Levenspiel, 1972).

$$\tau \equiv \frac{\sum t_i C_i \Delta t_i}{\sum C_i \Delta t_i} \quad (3.8)$$

$$\sigma^2 \equiv \frac{\sum t_i^2 C_i \Delta t_i}{\sum C_i \Delta t_i} - \tau^2 \quad (3.9)$$

où C_i représente la concentration du traceur mesurée à un nombre discret de temps t_i , et Δt_i représente l'intervalle de temps entre deux mesures.

Pour faciliter la comparaison des courbes, la fonction DTS est souvent présentée sous forme adimensionnelle. Dans ce cas, $E(t)$ est remplacé par $E_\theta (= E \cdot \tau)$ et le temps est remplacé par $\theta (= t/\tau)$.

3.5.2.2 Essais de traçage

L'étude de la distribution des temps de séjour au sein des deux configurations de biofiltres a été réalisée à l'aide d'essais de traçage avec injection instantanée (Fogler, 1992). Le choix du traceur s'est arrêté sur le tritium ($^3\text{H}_2\text{O}$), parce qu'il répondait à tous les critères mentionnés plus haut. Ainsi, au début de chaque expérience, une injection de 250 μL d'eau tritiée, d'activité spécifique de 1 mCi/g (Sigma Chemical Co., St-Louis, MO, USA), était faite à l'entrée des biofiltres. L'eau sortant des biofiltres était ensuite échantillonnée à intervalles réguliers, entre 2 et 10 minutes selon le temps écoulé. Les échantillons prélevés étaient finalement mélangés à du cocktail à scintillation (Wallac, Optiphase, Turku, Finlande) et lus par un compteur à scintillation Wallac (modèle 1409, Turku, Finlande), pour obtenir des points $C_i(t_i)$ en cpm/mL.

Les protocoles expérimentaux suivis lors de la réalisation de ces essais sont fournis à l'annexe D (PE-19C et PE-19D).

3.5.2.3 Comportement hydrodynamique initial : essais en laboratoire

Pour effectuer les essais de laboratoire, les biofiltres pilotes ont dû être reliés à un montage expérimental permettant, entre autres, l'alimentation en eau et la prise de mesures. Un schéma du montage expérimental est présenté à la Figure 3.5. Au cours de ces essais, une pompe péristaltique (Masterflex, modèle 7520-25, Cole-Parmer Instrument Co., Barrington, IL, USA) avec deux têtes standards (modèle 7018-20) a été employée pour alimenter les biofiltres. L'eau était pompée à un débit de 1,8 L/min (correspondant à un taux de charge hydraulique (TCH) de $10 \text{ m}^3/\text{m}^2.\text{j}$), à partir d'un réservoir de 4 L continuellement alimenté en eau du robinet. L'emplacement des ports d'injection et d'échantillonnage est aussi indiqué à la Figure 3.5.

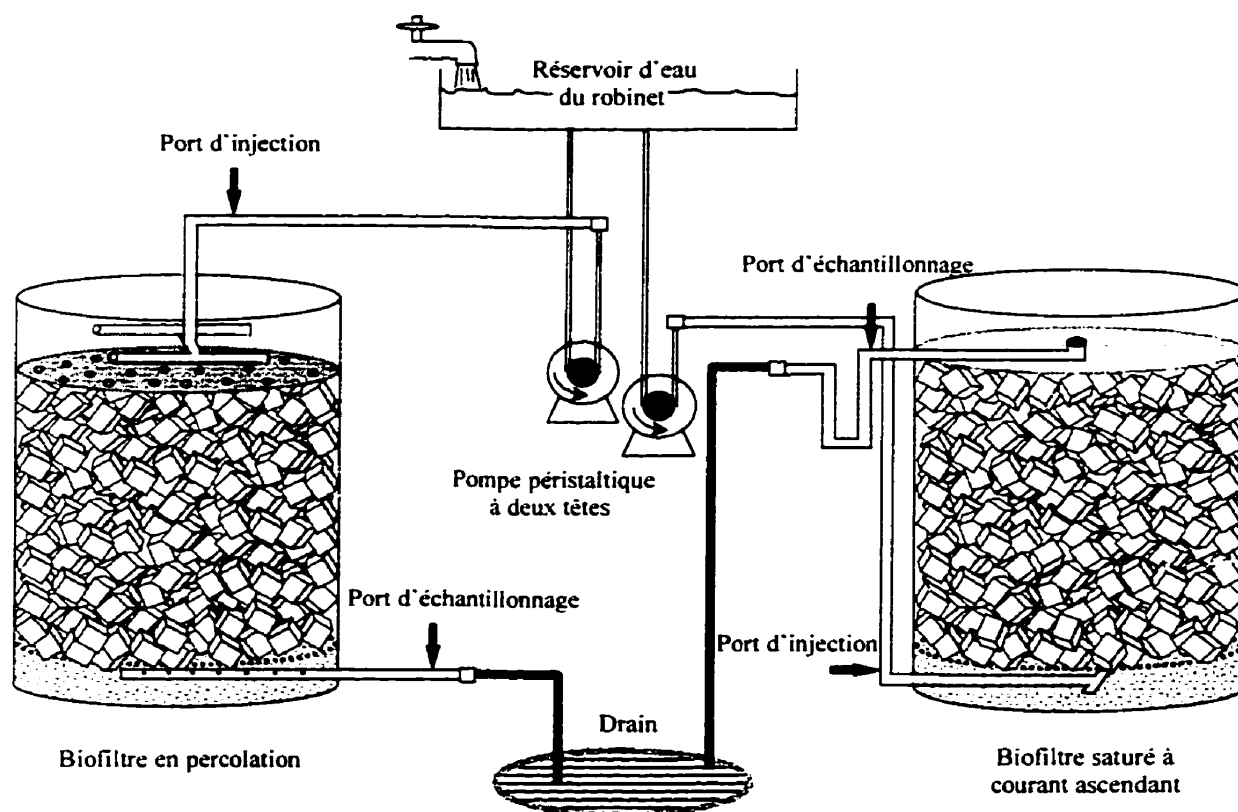


Figure 3.5 : Schéma du montage expérimental pour réaliser les essais de traçage en laboratoire.

3.5.2.4 Comportement hydrodynamique après 19 semaines de biofiltration : essais sur le terrain

Des essais de traçage ont aussi été réalisés sur le terrain après 19 semaines d'opération. Lors de ces essais avec les deux configurations de biofiltres, un TCH de $10 \text{ m}^3/\text{m}^2\cdot\text{j}$ (correspondant à environ $1,8 \text{ L}/\text{mn}$) était aussi maintenu. L'eau souterraine était puisée du bassin de rétention par une pompe péristaltique Masterflex (modèle 7520-25, Cole-Parmer Instrument Co., Barrington, IL, USA) qui alimentait les biofiltres à un débit constant. Les ports d'injection et d'échantillonnage étaient tels qu'illustrés à la Figure 3.5.

CHAPITRE 4

RÉSULTATS

Le chapitre qui suit se divise en quatre sections. La première présente les résultats des essais reliés à la caractérisation initiale de la tourbe granulaire. La seconde fait état des problèmes rencontrés et des résultats obtenus lors de la biofiltration en continu à l'échelle pilote. Enfin, les troisième et quatrième sections présentent les suivis microbiologique et hydrodynamique effectués sur les biofiltres au cours des essais de terrain.

4.1 CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MICROBIOLOGIQUES DE LA TOURBE GRANULAIRE

La caractérisation du milieu filtrant était une étape préliminaire essentielle pour la suite du projet. Avant d'entamer le processus de conception des biofiltres, il était primordial de s'assurer que la tourbe granulaire produite par Premier Tech (Rivière-du-Loup, Québec) possédait des micro-organismes ayant la capacité de dégrader les BTEX, tel que montré par Forget (1997). De même, de bonnes propriétés mécaniques devaient être assurées pour poursuivre la recherche. Dans cette section, les résultats de la caractérisation initiale de la tourbe sont présentés.

4.1.1 Activité de minéralisation du ^{14}C -toluène

La minéralisation du toluène radioactif en conditions aérobies par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire a été étudiée en microcosmes. Cette expérience avait pour but de déterminer si la tourbe granulaire possédait une flore microbienne capable

de minéraliser le toluène radioactif (par rapport aux essais de Forget (1997)). Par la même occasion, différentes méthodes d'aération ont été testées.

La Figure 4.1 présente l'évolution de la minéralisation du ^{14}C -toluène par les micro-organismes de la tourbe granulaire dans de l'eau souterraine synthétique. Les écarts-types des courbes ont été calculés à partir de triplicatas et la concentration initiale en toluène était de 4,3 mg/L dans chaque microcosme. Au cours des 35 jours aucune activité de minéralisation n'a été notée dans les témoins abiotiques.

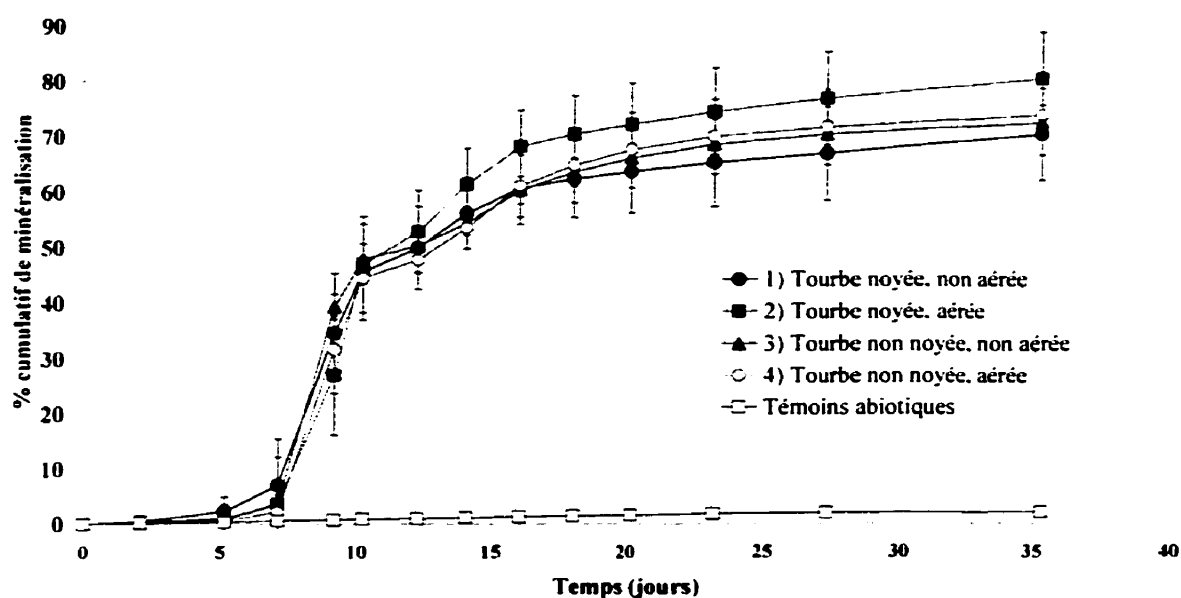


Figure 4.1 : Minéralisation aérobie du ^{14}C -toluène à 10 °C par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire dans de l'eau souterraine synthétique tamponnée, sous différentes conditions d'aération.

Les termes « tourbe noyée » et « aérée » retrouvés dans la légende de cette figure correspondent aux différentes conditions d'aération discutées au paragraphe 3.1.2.1. Ainsi, « tourbe noyée » signifie que la tourbe et l'eau souterraine synthétique ont été mis en contacts deux jours avant l'injection de toluène radioactif et agités pour permettre à la tourbe granulaire de sédimenter. Au contraire, « tourbe non noyée »

signifie que la tourbe granulaire et l'eau n'ont été mis en contact que quelques minutes avant l'injection de radioactivité. Enfin, les indications « aérée » et « non aérée » signifient qu'un barbotage d'une heure a été effectuée, ou non, dans l'eau des microcosmes avant l'injection.

Les courbes illustrées à la Figure 4.1 ont toutes des allures très semblables. Pour faciliter leur comparaison, les trois paramètres présentés au paragraphe 3.1.2.2 « Analyse des courbes de minéralisation », ont été calculés pour chacune des courbes (Tableau 4.1).

Tableau 4.1 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.1

N° SÉRIE	TEMPS DE LATENCE (JOURS)	TAUX MAXIMAL DE MINÉRALISATION		% FINAL DE MINÉRALISATION
		(%/J)	(MG/L.J)	
1	5-7	13 ± 5	0,6 ± 0,2	70 ± 8
2	5-7	19 ± 9	0,8 ± 0,4	80 ± 4
3	5-7	17 ± 2	0,73 ± 0,09	72 ± 3
4	5-7	14 ± 2	0,60 ± 0,09	74 ± 7

Pour toutes les séries, un temps de latence de 5 à 7 jours est observé, suivi de la seconde phase où les taux maximums de minéralisation sont obtenus. Au dixième jour, les taux de minéralisation ralentissent et se stabilisent après environ 20 jours. Le changement de pente au jour 12 s'explique par le fait que les microcosmes n'ont pas été agités du 10^{ième} au 12^{ième} jour. L'agitation ayant pour but de favoriser les échanges, une diminution du taux de minéralisation sera liée à la diminution du contact tourbe/eau et donc du contact micro-organismes/contaminant. Enfin, après 35 jours, 74 ± 6 % du toluène radiomarqué a été minéralisé en moyenne dans toutes les séries.

Ces observations permettent de conclure que les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire possèdent la capacité génétique de dégrader le toluène, car seulement 5 à 7 jours ont été nécessaires à l'acclimatation de la biomasse. Compte tenu du facteur de retardement élevé (22,6) déterminé par Forget (1997), il est aussi possible que le temps de latence observé soit dû à une adsorption du toluène sur la tourbe granulaire neuve. Par la suite, une désorption permettrait au contaminant de devenir biodisponible (Alexander, 1994).

Ensuite, les résultats montrent que l'aération est suffisante (oxygène non limitant) dans toutes les séries de microcosmes car, en tenant compte des écarts-types, aucune différence significative n'est observée entre les courbes de minéralisation, et ce, peu importe la méthode d'aération employée. En effet, pour toutes les séries, les taux maximums de minéralisation observés se situaient entre $0,6 \pm 2$ et $0,8 \pm 4$ mg/L.j avec une moyenne de 0,68 mg/L.j et des pourcentages finaux de minéralisation allant de 70 ± 8 % à 80 ± 4 % avec une moyenne de 74 %. Ainsi, que l'eau des microcosmes soit aérée ou non et que la tourbe flotte ou non, cela n'affecte pas l'activité de minéralisation du toluène. Suite à ce résultat, les expériences subséquentes en microcosmes n'ont pas inclus une étape d'aération préliminaire de l'eau.

Les résultats présentés précédemment confirment en tous points ceux obtenus par Forget (1997) lors d'essais de minéralisation dans les mêmes conditions. En effet, l'auteur cite un pourcentage final de minéralisation autour de 70 % obtenu après 21 jours d'incubation. Ainsi, la dégradation du toluène par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire n'a pas été affectée par les changements dans le mode de production des granules de tourbe. Ce faisant, il est donc possible de s'attendre à ce que les résultats intéressants de dégradation en colonne obtenus par Forget (1997) puissent se répéter avec les nouveaux granules de tourbe, dans d'autres essais en continu.

4.1.2 Propriétés physiques de la tourbe granulaire

Suite aux essais de densité relative et de conductivité hydraulique réalisés au département de génie minéral de l'École Polytechnique de Montréal, certaines propriétés physiques de la tourbe granulaire ont été déterminées (Tableau 4.2).

Tableau 4.2 : Propriétés physiques de la tourbe granulaire

PROPRIÉTÉS	VALEURS OBTENUES
Densité relative des grains (G_s) (20°/20°)	1.422
Conductivité hydraulique (K)	
Milieu partiellement saturé (548 % hum)	2.2×10^{-1} cm/s
Milieu complètement saturé (595 % hum)	8.1×10^{-1} cm/s
Porosité (n)	90,2 %
Masse volumique apparente (ρ)	
Telle que reçue (teneur en eau de 9,6 %)	0,153 g/cm ³
Tourbe sèche (après 2 jours à 105°C)	0,139 g/cm ³

La densité relative des grains (G_s) indique qu'à 20 °C, la tourbe granulaire est 1.422 fois plus dense que l'eau. Cette valeur sera utilisée lors des calculs de rétention compris dans les essais hydrostatiques.

La conductivité hydraulique de la tourbe granulaire varie de 2.2 à $8,1 \times 10^{-1}$ cm/s dépendant du niveau de saturation. Il s'agit de valeurs très élevées, de l'ordre de celles d'un lit de sable ou de gravier (Todd, 1980). En comparaison avec les résultats obtenus par Forget (1997), la conductivité hydraulique de la tourbe granulaire a augmenté suite aux modifications apportées au mode de fabrication des granules chez Premier Tech. En effet, Forget présentait une valeur de $1,2 \times 10^{-2}$ cm/s, soit un ordre de grandeur plus faible. Ce changement est un point positif pour le milieu filtrant, puisque d'importants débits pourront y circuler sans que le point de noyade (vitesse superficielle plus élevée que la conductivité hydraulique du milieu) ne soit atteint.

Enfin, les valeurs de porosité (90,2 %) et de masse volumique apparente (0,153-0,159 g/cm³) sont assez semblables à celles de la tourbe de sphaigne seule (Tableau 3.1). Selon les données fournies par Premier Tech, la tourbe de sphaigne présente des porosités autour de 96-97 % et des densités apparentes de 0,06 à 0,14 g/cm³. La légère différence observée peut être associée à l'agent liant ajouté dans la tourbe granulaire lors de sa fabrication.

Tout comme la conductivité hydraulique, la porosité de la tourbe granulaire a augmenté avec les modifications du procédé de fabrication, passant de 80,8 % (Forget, 1997) à 90,2 %. L'importante porosité du milieu implique généralement une surface de contact tourbe/eau élevée, ce qui devrait augmenter les échanges entre le milieu filtrant et l'eau souterraine contaminée et assurer des taux de biodégradation élevés.

En conclusion, l'objectif des essais préliminaires était de déterminer si les modifications apportées à la méthode de fabrication de la tourbe granulaire chez Premier Tech avaient influencé ses bonnes propriétés en tant que milieu filtrant. Avec les résultats obtenus, il est possible d'affirmer que la tourbe granulaire semble toujours un excellent milieu pour la filtration des eaux souterraines contaminées aux composés de l'essence.

4.2 ESSAIS DE TERRAIN : BIOFILTRATION EN CONTINU

Les essais préliminaires ayant montré que la tourbe granulaire possédait les caractéristiques d'un bon milieu filtrant, les étapes de conception et de construction des unités pilotes ont pu être réalisées. Les biofiltres ont ensuite été installés sur le terrain, puis modifiés pour permettre leur fonctionnement dans les conditions prévalant sur le site.

Pendant 5 mois, soit de juillet à décembre 1998, les biofiltres ont été alimentés en eau souterraine contaminée et des mesures régulières ont été prises à l'entrée et à la sortie de chacune des unités. La réalité des projets de terrain étant ce qu'elle est, des difficultés techniques ont été rencontrées... La section qui suit fait donc état du suivi de la dégradation des BTEX lors de l'opération en continu, mais d'abord, les modifications apportées à la configuration des biofiltres ainsi qu'un résumé des problèmes techniques survenus lors des essais de terrain sont présentés.

4.2.1 Modifications apportées aux biofiltres

Au départ, les biofiltres étaient tel que décrits à la section 3.2. Cependant, avec le début des essais de terrain, des modifications ont rapidement dû être apportées aux unités. En effet, l'opération en continu a mis en lumière certains problèmes relatifs à la configuration des biofiltres, survenus en partie à cause des conditions difficiles retrouvées sur le site.

4.2.1.1 *Biofiltres en percolation*

Après quelques semaines d'opération laissées au système pour s'assurer du régime permanent, une vérification de l'état du milieu filtrant dans les biofiltres en percolation a montré que la distribution de l'eau sur la tourbe granulaire n'était pas du tout adéquate. Dans les deux unités en percolation, la surface du milieu filtrant était mouillée par endroits, moisie et complètement sèche à d'autres (voir photographie à l'annexe C). En effet, comme il était difficile de mettre à niveau les plaques perforées sur le dessus de la tourbe, l'eau alimentée s'égouttait toujours par les mêmes orifices. Avec le temps, des dépôts ferriques ont bouché les trous (discuté à la sous-section 4.2.2), si bien que l'eau alimentée ne s'écoulait plus que par les parois (autour de la plaque perforée). De plus, l'humidité produite par l'évaporation de l'eau dans les

biofiltres était emprisonnée sous la plaque et favorisait l'apparition de champignons sur les granules de tourbe humides. Enfin, il a aussi été constaté que les plaques empêchaient la circulation d'air entre le milieu filtrant et l'espace de tête, limitant la possibilité d'aérer l'eau et d'améliorer les concentrations en oxygène dissous. Pour toutes ces raisons, les plaques perforées ont été retirées des biofiltres en percolation. Seuls les distributeurs en « H » ont été conservés pour assurer la distribution.

4.2.1.2 Biofiltres saturés à courant ascendant

Dans le cas des biofiltres saturés, un autre problème majeur a été rencontré. Malgré le fait que des grillages aient été placés à la surface des milieux filtrants, des cubes de tourbe réussissaient toujours à passer entre les mailles pour aller bloquer les trop-pleins. Il s'ensuivait un débordement des biofiltres et une inondation des petits biofiltres à COV fixés aux couvercles. Les premières tentatives de résolution de ce problème ont consistées en la modification des trop-pleins et de la tuyauterie en augmentant leur diamètre. Cependant, les conduites finissaient inmanquablement par se boucher à un autre endroit. Enfin, la solution définitive a été d'installer les plaques perforées (anciennement dédiées aux biofiltres en percolation) sous les trop-pleins. De cette manière, l'eau seule pouvait se rendre à la sortie.

Rappelons qu'une seule visite par semaine était faite sur le site, ce qui a eu pour effet d'augmenter considérablement les délais de modification et d'ajustement face aux problèmes constatés. Ainsi, avant que les biofiltres fonctionnent sans problème, six semaines s'étaient déjà écoulées.

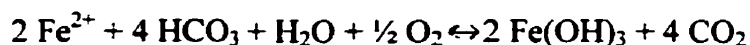
4.2.2 Problèmes techniques

Une fois les biofiltres modifiés et rendus fonctionnels, certaines difficultés techniques sont apparues. Ces dernières peuvent être classées en trois grandes catégories : le maintien de l'oxygène dissous; l'alimentation constante des biofiltres; et les limites d'opération du système de distribution liquide dans les biofiltres en percolation. Toutes trois seront discutées dans les paragraphes qui suivent.

4.2.2.1 *Maintien de l'oxygène dissous*

Au départ, l'eau souterraine provenant de l'aquifère ne contenait pas d'oxygène dissous (OD), empêchant la biodégradation aérobie des composés BTEX. Pour pallier ce manque, un système d'aération permettant d'atteindre des concentrations de l'ordre de 6 mg/L en OD à l'entrée des biofiltres a été installé dans le réservoir tampon. Ainsi, pendant quelques semaines l'aération a été suffisante pour maintenir de bonnes concentrations d'OD dans l'eau à l'entrée des biofiltres. Malheureusement, l'aération a aussi eu plusieurs effets néfastes qui sont apparus graduellement au cours des semaines :

- 1) Perte d'hydrocarbures légers par volatilisation dans le bassin aéré. L'analyse des composés BTEX a montré que près de 50 % des hydrocarbures légers étaient volatilisés au cours de l'aération (la concentration totale en BTEX passait de 10 à 5 mg/L environ).
- 2) Oxydation du fer(II) dans l'eau en oxyde ferrique(III). En effet, lorsque l'eau ferrugineuse (II) vient en contact avec l'air, une réaction de ce type se produit (Simard et Des Rosiers, 1980) :



Le fer ferrique (III) est beaucoup moins soluble que le fer ferreux (II), puisqu'on le retrouve sous forme d'ion complexe à un pH supérieur à 3,0. La solubilité de $\text{Fe}(\text{OH})_3$ étant très faible à pH normal, le fer aura surtout tendance à précipiter, ce qui causera la coloration de l'eau (Simard et Des Rosiers, 1980). Ainsi, d'importants dépôts ferriques se sont formés partout dans le système et se sont accumulés au sein des biofiltres, dans la tourbe granulaire. En plus, une partie de l'oxygène dissous fourni à l'eau était employée à l'oxydation du fer, ce qui diminuait la quantité d'oxygène disponible pour la biodégradation.

- 3) Production de biofilm sur toutes les surfaces du système. Les parois intérieures du bassin aéré et de la tuyauterie sont devenues couvertes de biomasse.
- 4) Colmatage du diffuseur d'air, des conduites et des distributeurs (en percolation) par des dépôts ferriques et de la biomasse. La formation continue d'oxydes métalliques et de biofilms diminuait considérablement le diamètre utile des conduites et bouchait les trous du diffuseur et des distributeurs, les rendant beaucoup moins efficaces.

Enfin, après quelques semaines d'aération, à cause de l'importante production de biomasse dans le bassin aéré et dans les conduites, l'OD s'est trouvé complètement consommé avant d'atteindre l'entrée des biofiltres. De surcroît, l'absence d'oxygène dans l'eau s'est rapidement traduite par une absence d'oxygène gazeux dans l'espace de tête des biofiltres. Ce faisant, les petites unités de biofiltration des gaz n'ont pas pu fonctionner tel que prévu, puisqu'il s'agissait d'un traitement des COV en conditions aérobies.

4.2.2.2 Alimentation constante des biofiltres

L'alimentation des quatre biofiltres à partir du bassin aéré devait se faire à débits constants et égaux pour toutes les unités, de manière à faciliter leur comparaison et à permettre la détermination d'une cinétique de biodégradation. Pour cela, des pompes péristaltiques avaient initialement été choisies. Ces dernières ont permis une alimentation régulière au cours des six premières semaines. Cependant, avec le temps, il est devenu clair que les pompes employées n'étaient pas conçues pour des conditions de terrain. En effet, malgré le remplacement régulier des tubages dans les têtes de pompe, puis des têtes elles-mêmes, des bris réguliers ont mis en évidence le besoin de nouvelles pompes plus robustes.

La logique aurait été de se procurer des pompes péristaltiques (ou à déplacement positif) conçues pour le terrain. Malheureusement, de telles pompes sont coûteuses et n'étaient pas disponibles lors de la modification du système. Ainsi, à la 13^{ème} semaine d'opération, une pompe centrifuge submersible a été installée dans le réservoir tampon. À sa sortie, le courant était divisé en quatre et les débits allant aux biofiltres devaient pouvoir être contrôlés à l'aide de vannes. Les pompes centrifuges étant des pompes à pression constante, le débit fourni varie avec la perte de charge dans les conduites en aval. À cause de l'accumulation continue de dépôts dans les tuyaux (biomasse et oxyde de fer), les pertes de charge augmentaient dans le temps, faisant diminuer les débits d'une semaine à l'autre. Cela étant, le contrôle des débits s'est avéré excessivement difficile, rendant l'alimentation des biofiltres irrégulière. Cet inconvénient faisait partie du compromis effectué lors du choix de la pompe centrifuge comme mode d'alimentation. En effet, ce type de pompe n'est pas conçu pour contrôler des débits, mais il a été jugé qu'il valait mieux une alimentation irrégulière que pas d'alimentation du tout, dû aux bris et aux arrêts réguliers des pompes péristaltiques.

4.2.2.3 Limites d'opération du système de distribution liquide en percolation

La distribution de l'eau dans les biofiltres en percolation a posé certains problèmes. Tout d'abord il y a eu la mauvaise distribution due aux plaques perforées (discutée au paragraphe 4.2.1.1). Par la suite, le distributeur en « H » devait être nettoyé chaque semaine, car il se bouchait avec la biomasse et les dépôts ferriques. Ainsi, avant d'être nettoyés, les orifices étaient encrassés ou colmatés et seuls quelques trous giclaient à pleine pression, mais après le nettoyage, il n'y avait plus suffisamment de pression pour que le liquide soit uniformément distribué. La distribution dans les biofiltres en percolation n'a donc jamais été réellement adéquate.

4.2.3 Biodégradation des BTEX en continu

À cause des difficultés rencontrées, l'échantillonnage des BTEX n'a pas été effectué à toutes les semaines comme il était prévu de départ. En effet, lorsque les biofiltres se bouchaient et débordaient ou lorsque les pompes étaient arrêtées, aucun échantillon n'était pris, puisque les conditions d'opération n'étaient pas adéquates. Aussi, après 16 semaines d'opération, les biofiltres ont continué d'opérer en continu, mais les prises de mesures et les échantillonnages ont cessé.

4.2.3.1 Suivi des paramètres opératoires

Les mesures de températures, de pH, d'oxygène dissous et de débits ont été effectuées hebdomadairement entre juillet et novembre 1998. Au cours de cette période, les valeurs de pH et de températures sont restées très stables. Dans l'eau à l'entrée comme à la sortie des quatre biofiltres, le pH s'est maintenu à $6,6 \pm 0,1$, valeur optimale pour la croissance microbienne (Benefield et Randall, 1980). Pour ce qui est de la température de l'eau, elle s'est maintenu autour de 14 °C et n'a pas varié de plus de 2 °C (Tableau 4.3), ce qui est relativement peu compte tenu du changement de saison.

Tableau 4.3 : Variation de la température de l'eau souterraine au cours des essais de terrain

POINT DE MESURE	TEMPÉRATURE (°C)
Entrée des biofiltres	13,7 ± 0,7
Sorties – biofiltres en percolation	
P1	14 ± 1
P2	14 ± 1
Sorties – biofiltres saturés	
S1	15 ± 2
S2	15 ± 2

Suite aux problèmes d'aération et d'alimentation des biofiltres, les mesures d'oxygène dissous et de débits se sont avérées beaucoup moins stables. Les résultats obtenus du suivi de l'OD dans l'eau à l'entrée et à la sortie des biofiltres sont présentés à la Figure 4.2.

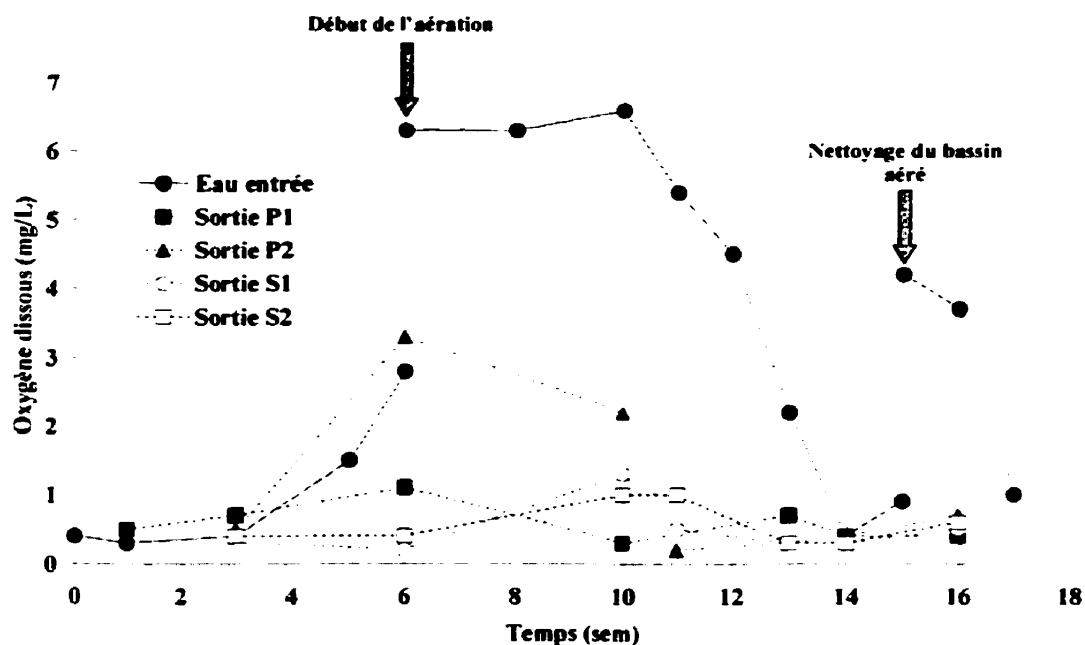


Figure 4.2 : Variation de l'oxygène dissous dans l'eau souterraine à l'entrée et à la sortie des biofiltres.

À partir de la Figure 4.2, il est possible de définir trois périodes majeures marquant les concentrations en OD dans l'eau souterraine alimentée aux biofiltres. La première concerne les six premières semaines d'opération, où aucune aération n'était effectuée dans le bassin de rétention. Pendant cette période, les concentrations d'OD étaient faibles à l'entrée comme à la sortie des biofiltres, se maintenant généralement en dessous de 2 mg/L. À la sixième semaine, des mesures légèrement plus élevées ont été notées dans l'eau à l'entrée et à la sortie de P2. Ces augmentations apparentes peuvent être associées à l'erreur de mesure, puisque aucune source d'aération ne pourrait expliquer cette variation soudaine. En effet, les mesures d'OD étaient parfois longues à se stabiliser. Si la valeur a été notée avant que l'appareil n'indique la mesure stable, il se peut qu'une surestimation de l'OD ait été faite.

La seconde période s'étend de la semaine 6 à la semaine 10. Pendant ce laps de temps, le réservoir tampon était aéré et les concentrations d'OD à l'entrée des biofiltres

atteignaient près de 6,5 mg/L. Les mesures aux sorties des biofiltres se maintenaient en dessous de 2 mg/L, ce qui indique possiblement la consommation d'oxygène dissous par des bactéries. Une analyse de la biodégradation dans le temps est présentée un peu plus loin au paragraphe 4.2.3.3 « Suivi de l'enlèvement des BTEX ».

La troisième et dernière période, qui débute à la semaine 10 et se prolonge jusqu'à la fin des essais, est marquée par la croissance graduelle de biomasse partout dans le système. Cette biomasse aérobie, stimulée par l'aération, s'est développée sur les parois du bassin de rétention ainsi que dans toutes les conduites reliant le réservoir tampon aux biofiltres. C'est cette population bactérienne grandissante qui explique la diminution des concentrations d'OD mesurées dans l'eau à l'entrée des biofiltres entre les semaines 10 et 14 (de 6,5 à 0,4 mg/L). D'ailleurs, lorsqu'un nettoyage complet du bassin aéré a été effectué à la semaine 15, la concentration d'OD à l'entrée des biofiltres a tout de suite augmenté à 4,0 mg/L (et non 6,5 mg/L car un biofilm était toujours présent dans les conduites). Malheureusement, cette amélioration d'aération s'est rapidement détériorée avec la croissance de nouvelle biomasse dans le réservoir tampon et le colmatage du diffuseur d'air.

Le dernier paramètre opératoire suivi hebdomadairement était le débit. La variation dans le temps des débits alimentés aux quatre biofiltres est présentée à la Figure 4.3 pour les biofiltres en percolation et à la Figure 4.4 pour les biofiltres saturés à courant ascendant.

À chaque semaine, les débits diminuaient légèrement (à cause de l'écrasement des tubes dans les têtes de pompes péristaltiques) et étaient réajustés lors de la visite hebdomadaire. Les points représentent donc les mesures de débits effectuées avant et après le réajustement et les traits représentent la variation des débits au courant de la semaine.

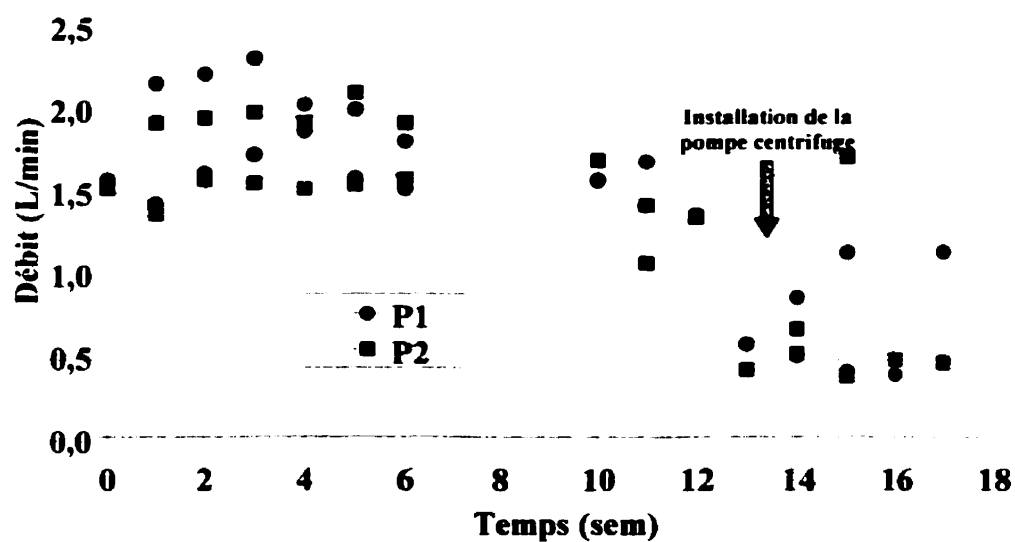


Figure 4.3 : Variation des débits alimentés aux biofiltres dans le temps pour les biofiltres en percolation.

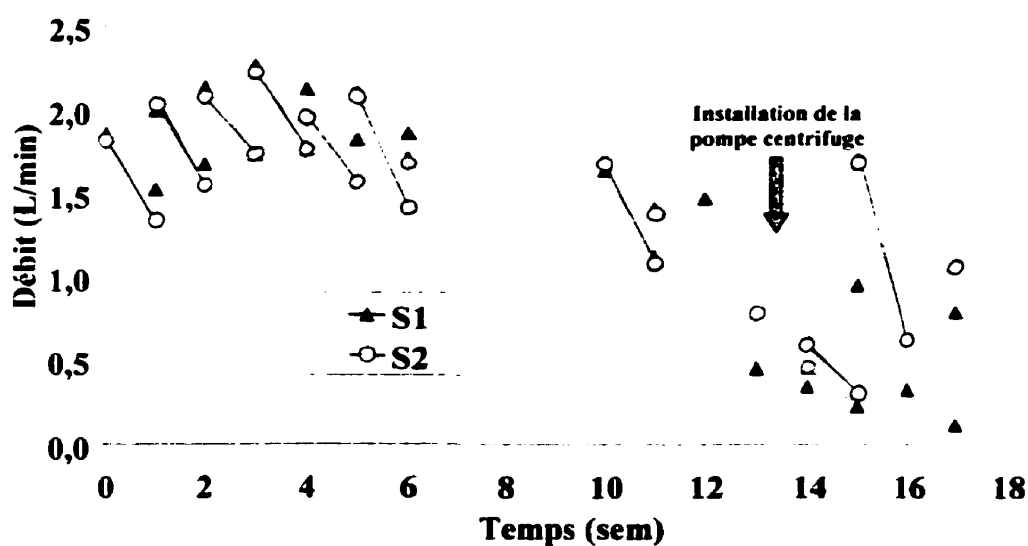


Figure 4.4 : Variation des débits alimentés aux biofiltres dans le temps pour les biofiltres saturés à courant ascendant.

Tout comme pour l'OD, la plage de temps peut être divisée en trois périodes. Durant la première période, s'étalant de la semaine 0 à la semaine 6, les pompes péristaltiques

alimentant les biofiltres fonctionnaient bien et les débits moyens se situaient autour de 1.8 L/min, ce qui correspondait au débit fixé.

La seconde période est caractérisée par le mauvais fonctionnement des pompes péristaltiques. Entre les semaines 7 et 9, aucun débit n'a été mesuré car des problèmes d'alimentation et de bris de pompes ont été rencontrés. Par la suite, la fatigue des composantes des pompes s'est fait sentir et des débits très variables ont été mesurés jusqu'à la semaine 13.

Enfin, à la semaine 13, les pompes péristaltiques ont été remplacées par une pompe centrifuge submersible. Cependant, les variations de perte de charge dans les conduites se sont traduites par des débits variables (entre 0,1 et 1,8 L/min) et en général beaucoup plus faibles que les débits de 1,8 L/min prévus (discuté au paragraphe 4.2.2.2).

En résumé, le suivi des paramètres opératoires a montré que le pH et la température de l'eau souterraine sont restés très stables tout au long des essais de terrain. Par ailleurs, le maintien de l'oxygène dissous à des concentrations stables s'est avéré impossible. Des concentrations de 6,5 mg/L ont été obtenues avec l'aération dans le réservoir tampon, mais à cause de l'importante croissance bactérienne partout dans le système, la biomasse consommait l'OD avant même que l'eau ne soit alimentée aux biofiltres. Enfin, une alimentation régulière et au débit prévu (1.8 L/min) a été obtenue au cours des six premières semaines d'opération. Par la suite, la fatigue des composantes des pompes péristaltiques et leur remplacement par une pompe centrifuge submersible ont rendu les débits alimentés aux biofiltres beaucoup plus variables et plus faibles que désiré.

4.2.3.2 *Traitement des COV*

L'analyse d'une cartouche de charbon activé, placée à la sortie d'un des petits biofiltres pour le traitement des émanations gazeuses, a montré que des COV passaient au travers du milieu filtrant sans se faire dégrader, fait souligné par les odeurs aromatiques à la sortie de ces unités. À cause de l'absence d'oxygène gazeux dans l'espace de tête des biofiltres, le traitement des COV n'a pas eu lieu et les résultats d'analyse ont montré que 5 360 mg d'essence (dont 240 mg de benzène, 24 mg de toluène, 6 mg d'éthylbenzène et 13 mg de xylènes) étaient sortis d'un biofiltre à COV en 2 semaines. Il est cependant difficile de savoir si les composés organiques émis au cours des 17 semaines d'essais ont dépassé les concentrations prescrites par la C.U.M. (*Règlement relatif à l'assainissement de l'air et remplaçant les règlements 44 et 44-1 de la Communauté*, Régl. n°90, 1986). En effet, à cause de l'absence de mesure de débit gazeux, il est difficile d'estimer les concentrations émises. De plus, les concentrations à respecter doivent être mesurées à la limite de la propriété et en tenant compte des vents, ce qui dépasse le cadre de la présente étude.

4.2.3.3 *Suivi de l'enlèvement des BTEX*

Les divers problèmes d'alimentation et d'aération rencontrés au cours des essais de terrain ont influencé les résultats de biodégradation au sein des biofiltres. La Figure 4.5 illustre la variation des taux de charge organique (en mg BTEX/h) à l'entrée et à la sortie de chacune des unités. Les résultats d'analyses détaillant les concentrations de chacun des composés BTEX sont fournis à l'annexe G.

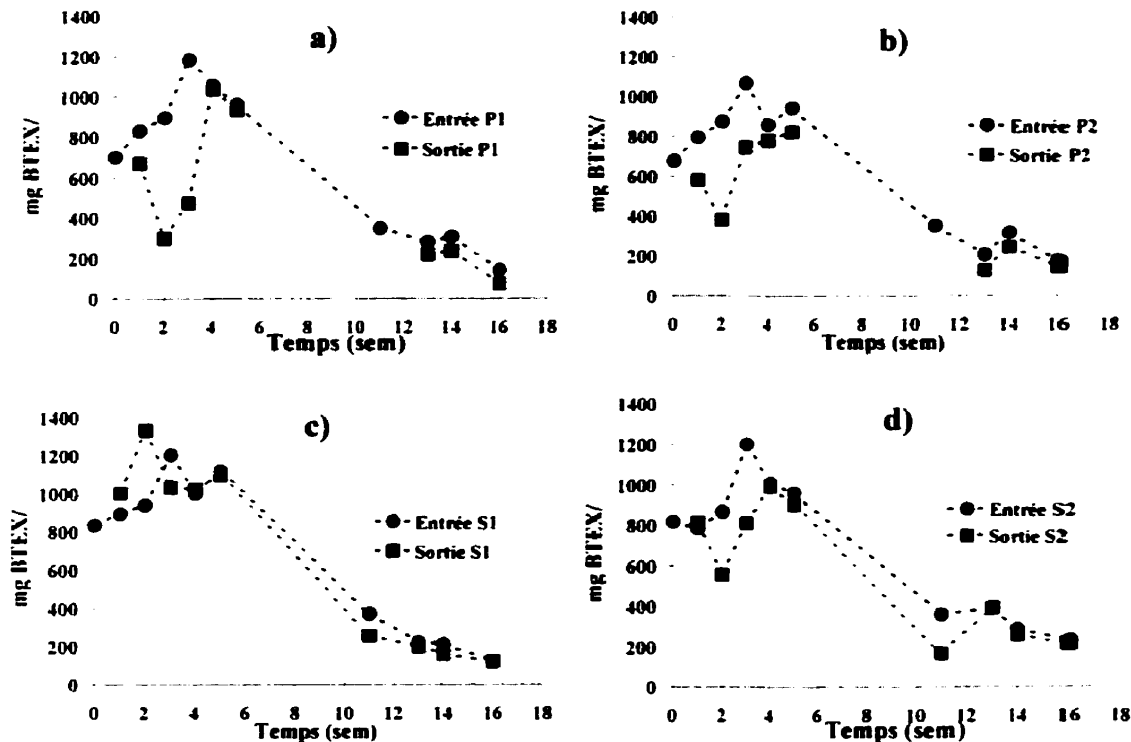


Figure 4.5 : Variation des taux de charge organique à l'entrée et à la sortie des quatre biofiltres pilotes dans le temps, a) percolation (P1); b) percolation (P2); c) saturé (S1); d) saturé (S2).

Durant les six premières semaines d'opération, l'aération n'avait pas encore débutée dans le bassin de rétention. Malgré cela, c'est au cours des 2^{ème} et 3^{ème} semaines que les meilleurs taux d'enlèvement ont été observés dans les biofiltres en percolation (Figure 4.5a et b). Au cours de cette période, des taux de 600 et 710 mg BTEX/h ont été notés pour P1 et de 490 et 320 mg BTEX/h pour P2. Du fait que les biofiltres étaient en période de démarrage, plusieurs facteurs peuvent être tenus responsables de la diminution initiale des concentrations en BTEX aux sorties des biofiltres en percolation, soient l'adsorption, la volatilisation et la biodégradation.

En premier lieu, l'adsorption des hydrocarbures sur la tourbe neuve doit être considérée. D'après les essais réalisés par Forget (1997), l'adsorption du toluène sur la tourbe granulaire neuve suit un isotherme linéaire pour des concentrations dans l'eau

allant de 1,03 à 43,05 mg/L. Le coefficient de répartition tourbe granulaire/eau ainsi obtenu était de 0,1213 L/g sec. À partir de ces données, il est possible d'estimer la quantité de BTEX initialement adsorbée sur la tourbe granulaire contenue dans un biofiltre. En effet, tous ces composés ont des propriétés d'adsorption fort semblables (Zytner, 1994). Ainsi, sachant que la concentration à l'entrée des biofiltres était d'environ 10 mg BTEX/L, on peut estimer à 1,213 mg la quantité de BTEX adsorbée par gramme de tourbe sèche. En posant la masse totale de tourbe sèche égale à 21 545 g/biofiltre (soit le volume de tourbe/biofiltre (155 L) multiplié par la densité vrac de la tourbe sèche (0,139 mg/cm³)), on obtient 26 134 mg de BTEX adsorbé. Au débit alimenté (1,8 L/min) et à la concentration retrouvée dans l'eau (10 mg BTEX/L), il ne faut théoriquement pas plus de 24 heures pour saturer le milieu filtrant. En pratique, ce temps a dû être beaucoup plus long, car la tourbe granulaire prend plusieurs jours, voire semaines, à se mouiller complètement. Cependant, il est clair que les taux d'enlèvement de 300 à 700 mg BTEX/h observés dans les biofiltres en percolation au cours des premières semaines ne peuvent être entièrement attribués à l'adsorption.

Le deuxième phénomène possiblement responsable de l'enlèvement des BTEX dans l'eau souterraine est la volatilisation. Les plaques perforées, qui étaient encore en place dans les biofiltres en percolation, faisaient en sorte que l'eau souterraine contaminée devait d'abord séjourner sur le dessus de la plaque avant d'atteindre le milieu filtrant. Considérant que l'équilibre gaz/liquide était atteint, des pertes par volatilisation de l'ordre de 60 mg de BTEX dans l'espace de tête (de 20 L) peuvent être estimées par la loi de Henry (calculs détaillés à l'annexe F). Comme aucune circulation d'air n'avait lieu, la volatilisation semble un phénomène assez négligeable dans l'enlèvement des BTEX.

Ainsi, une bonne partie de l'enlèvement des BTEX observé au cours des premières semaines d'opération peut être associée à de la biodégradation. Comme il a déjà été mentionné, la tourbe granulaire a la particularité de se saturer très lentement. C'est

donc grâce à l'air initialement emprisonné dans les pores et interstices de la tourbe que de l'oxygène aura pu être fourni aux micro-organismes.

Pour ce qui est des biofiltres saturés, il est assez compréhensible que de moins bonnes performances aient été notées. En effet, c'est durant ces semaines que des problèmes de débordement ont été rencontrés. Malgré cela, des taux d'enlèvement de 310 et 390 mg BTEX/h ont été noté pour S2 au courant des semaines 2 et 3. Tout comme pour les biofiltres en percolation, la présence de poches d'air emprisonnées dans le milieu filtrant pourrait expliquer la disparition des BTEX par biodégradation. Par contre, S1 n'a montré aucun signe d'enlèvement, présentant même une augmentation des concentrations de BTEX entre l'entrée et la sortie aux semaines 1 et 2. Cette aberration pourrait s'expliquer d'une part, par la variation et l'erreur analytique et, d'autre part, par une désorption des BTEX adsorbés antérieurement. La différence de rendement entre les duplicatas S1 et S2 reste cependant difficile à expliquer.

Entre la semaine 6 et la semaine 10, l'aération était à son maximum et des concentrations d'environ 6 mg/L d'oxygène dissous étaient mesurées à l'entrée des biofiltres. Malheureusement, c'est au cours de cette période que des problèmes d'alimentation avec les pompes péristaltiques ont été rencontrés, et les échantillonnages n'ont pas été effectués.

À la semaine 11, les pompes fonctionnaient et l'aération était encore effective. Des échantillons d'eau n'ont été pris qu'à la sortie des deux biofiltres saturés, car un des biofiltres en percolation s'était bouché (et s'était saturé) alors que le distributeur de l'autre était complètement colmaté. Des taux d'enlèvement de 120 mg BTEX/h pour S1 et de 190 mg BTEX/h pour S2 ont alors été obtenus.

Par la suite, aucune dégradation substantielle n'a été notée, car tout l'OD était consommé avant l'entrée des biofiltres.

Enfin, il aurait été intéressant de présenter les résultats d'enlèvement des BTEX sous forme de bilans cumulatifs (débits, masse de contaminants ajoutés, masse de contaminants enlevés) pour faciliter la caractérisation de la performance globale du système. Malheureusement, le manque de données, principalement des concentrations de BTEX à la sorties des unités au cours de la période où l'aération était effective dans le réservoir tampon, aurait rendu la réalisation de tels bilans assez peu significative.

4.3 ESSAIS DE TERRAIN : SUIVI DE L'ACTIVITÉ BIOLOGIQUE

À cause des conditions limitées en oxygène dans les biofiltres, la dégradation des BTEX en continu n'a pas été clairement observée. Cependant, afin de suivre l'évolution de l'activité microbienne au sein des biofiltres, des essais de minéralisation en microcosmes et des comptes microbiens ont été réalisés à plusieurs moments au cours des expériences de biofiltration sur le terrain.

La section qui suit se divise en quatre grandes parties. D'abord, une caractérisation de l'activité microbienne de minéralisation du toluène est présentée. La seconde partie traite de la minéralisation de tous les composés BTEX par les micro-organismes de la tourbe granulaire. La troisième partie étudie l'apport des différentes populations bactériennes sur le traitement et enfin la dernière partie présente les résultats des dénombrements microbiens effectués sur l'eau souterraine et la tourbe au début et à la fin des essais de biofiltration.

4.3.1 Caractérisation de l'activité microbienne de minéralisation dans le temps

Des essais de minéralisation du ^{14}C -toluène en microcosmes ont été réalisés avec de la tourbe granulaire après 0, 8 et 14 semaines de biofiltration sur le terrain (Figure 4.6). Lors des différents essais, l'eau souterraine contaminée provenant du terrain a été

employée, avec ou sans tampon phosphate. Pour fins de comparaison, les résultats de l'essai préliminaire réalisé avec de l'eau souterraine synthétique tamponnée ont aussi été inclus à la Figure 4.6.

Les écarts-types des courbes ont été calculés à partir de triplicatas et la concentration initiale en toluène était de 4,3 mg/L dans chacun des microcosmes. Bien que non illustrés, les témoins abiotiques n'ont pas montré de minéralisation. Les abréviations TN, T x sem, ESS et EST retrouvées dans la légende signifient respectivement : tourbe neuve; tourbe ayant passé x semaines dans un biofiltre; eau souterraine synthétique et eau souterraine du terrain.

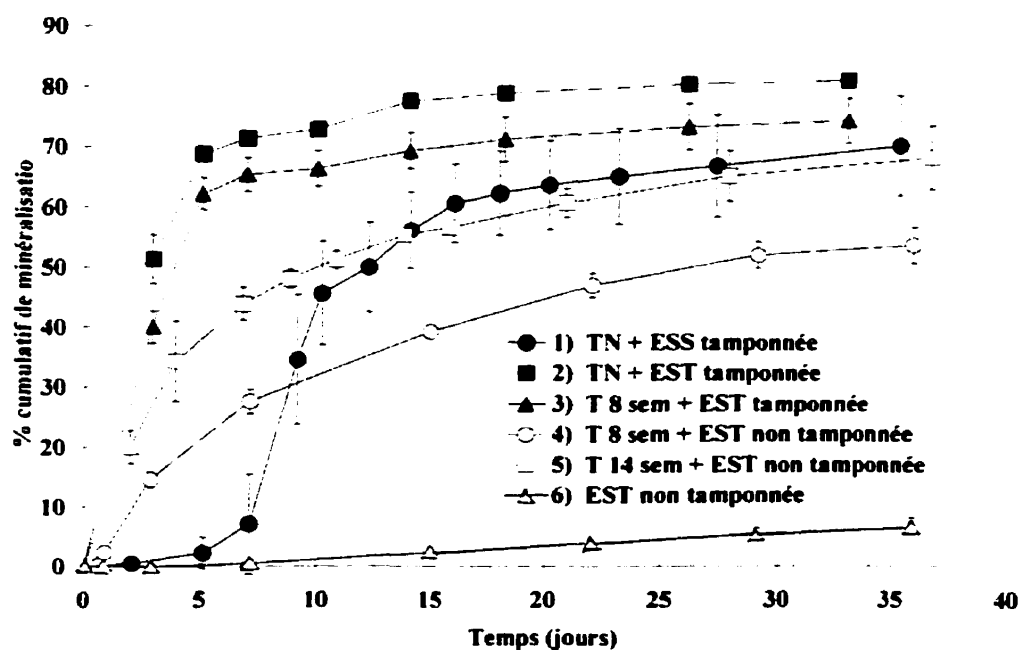


Figure 4.6 : Minéralisation du ^{14}C -toluène à 10°C en conditions aérobies par la tourbe granulaire dans de l'eau souterraine.

Afin de faciliter la comparaison des courbes et de départager les effets de chacun des composants des microcosmes sur l'activité biologique, une comparaison méthodique des résultats est présentée au Tableau 4.4. Les temps de latence, taux maximums et

pourcentage finaux de minéralisation ont été calculés d'après la méthode présentée au paragraphe 3.1.2.2 : « Analyse des courbes de minéralisation ».

Tableau 4.4 : Comparaison et analyse méthodiques des courbes de la Figure 4.6, présentées en ordre décroissant de minéralisation du ^{14}C -toluène

NO	TEMPS LATENCE (JOURS)	TAUX MAXIMAL (MG/LJ)	% FINAL	CONTENU	EXPLICATIONS
2	< 2	0.73 ± 0.04	80.9 ± 0.4	✓ Tourbe neuve ✓ EST + tampon	<ul style="list-style-type: none"> • Présence de PO_4 (tampon) • Micro-organismes adaptés dans l'eau souterraine
3	< 2	0.58 ± 0.04	74 ± 4	✓ Tourbe de 8 sem ✓ EST + tampon	<ul style="list-style-type: none"> • Présence de PO_4 (tampon) • Micro-organismes adaptés dans l'eau souterraine et dans la tourbe
1	2-3	0.6 ± 0.2	70 ± 8	✓ Tourbe neuve ✓ ESS + tampon	<ul style="list-style-type: none"> • Présence de PO_4 (tampon + ESS) • Pas de micro-organismes adaptés
5	< 2	0.47 ± 0.09	68 ± 5	✓ Tourbe de 14 sem ✓ EST, sans tampon.	<ul style="list-style-type: none"> • Absence de PO_4 • Micro-organismes adaptés dans l'eau souterraine et dans la tourbe • Dépôts ferriques sur les cubes de tourbe
4	< 2	0.3 ± 0.1	54 ± 3	✓ Tourbe de 8 sem ✓ EST, sans tampon	<ul style="list-style-type: none"> • Absence de PO_4 • Micro-organismes adaptés dans l'eau souterraine et dans la tourbe • Dépôts ferriques sur les cubes de tourbe
6	7	0.031 ± 0.004	7 ± 1	✓	<ul style="list-style-type: none"> • Absence de PO_4 • Micro-organismes adaptés dans l'eau souterraine et dans la tourbe • Absence de tourbe

À partir des données du Tableau 4.4, il ressort que les paramètres suivants influencent le la minéralisation du toluène :

- 1) Présence de micro-organismes adaptés;
- 2) Temps d'acclimatation des micro-organismes;
- 3) Présence du tampon phosphate.

De plus, d'autres paramètres tels la présence d'oxyde de fer sur les cubes de tourbe ou la quantité de nutriments disponibles sont à considérer.

La discussion a donc été divisée en quatre paragraphes, portant sur les paramètres mentionnés ci-haut.

4.3.1.1 Présence de micro-organismes adaptés

Dans un premier temps, les deux courbes présentant la minéralisation du ^{14}C -toluène en présence de tourbe granulaire neuve (courbes 1 et 2, Figure 4.6) ont été comparées. Il en ressort qu'en présence d'eau souterraine du terrain (courbe 2) la minéralisation est plus rapide et le plateau atteint est plus élevé qu'en présence d'eau souterraine synthétique (courbe 1). En effet, avec l'eau du terrain on ne note aucun temps de latence (par rapport à 2-3 jours), un taux maximal de minéralisation supérieur (0.73 mg/L.j par rapport à 0,6 mg/L.j) et un pourcentage final de minéralisation de 80.9 % (par rapport à 70 %).

Cette amélioration peut être attribuée à la présence d'une flore microbienne dans l'eau souterraine du terrain contaminée par les BTEX. Cette population, déjà adaptée, aura eu pour effet d'annuler le temps de latence associé à l'acclimatation des micro-organismes (Alexander, 1994). De plus, elle aura augmenté le nombre de micro-organismes présents, ayant pour effet d'améliorer le taux de biodégradation (considérant une dégradation en mg/cellule.jour, Sturman *et al.*, 1995). Enfin, la différence entre les pourcentages finaux de minéralisation pourrait être expliquée par le

fait que dans la série 2, contenant la tourbe neuve et l'eau souterraine synthétique, une augmentation initiale du nombre de bactéries dégradant le toluène a d'abord dû se faire (montré par le temps de latence). Cette production de biomasse aura impliqué l'utilisation d'une plus grande proportion de substrat pour la synthèse de cellules, dégradation qui n'a pu être perçue, puisque seul le $^{14}\text{CO}_2$ formé lors de la respiration était mesuré.

Il est important de souligner que malgré le fait que la microflore provenant de l'eau souterraine contaminée accélère la minéralisation du toluène, elle ne peut à elle seule être tenue responsable des taux de minéralisation observés dans la série 2. En effet, la série 6, qui ne contenait que de l'eau souterraine du terrain et des billes de verre, n'a permis d'atteindre que 7 % de minéralisation après 35 jours. Il se peut que cette différence notable soit due au fait que la biomasse de ces microcosmes était majoritairement en suspension, puisque les billes de verre n'offrent que très peu de surface spécifique. En effet, Sturman *et al.* (1995) soulignent que l'attachement des micro-organismes (sous forme de biofilm) peut avoir une grande importance sur leur capacité de dégradation.

Notons enfin que le temps de latence de la courbe 1 aurait pu être associé à une adsorption initiale du contaminant sur la tourbe granulaire neuve, tel que supposé lors des essais préliminaires (sous-section 4.1.1). Cependant, la comparaison des courbes 1 et 2 permet d'affirmer le contraire, puisque la même tourbe est employée et que le temps de latence n'est retrouvé que dans un des deux cas. L'absence de temps de latence en présence d'eau contaminés par divers produits pétroliers (courbes 2,3,4 et 5) montre aussi que le phénomène de diauxie (hypothèse avancée au paragraphe 3.1.2.2) n'est pas à la source de la période de latence. On en conclut donc que le délai observé avant le début de la minéralisation (courbe 1) est uniquement dû à l'acclimatation des micro-organismes.

4.3.1.2 Temps d'acclimatation des micro-organismes

La comparaison des courbes 4 et 5 (Figure 4.6) permet de constater une augmentation de l'activité biologique dans le temps au sein des biofiltres. En effet, la série de microcosmes réalisée avec de la tourbe ayant passé 8 semaines dans un biofiltre et de l'eau souterraine du terrain non tamponnée (courbe 4) présente un taux maximal de minéralisation de $0,3 \pm 0,1$ mg/L.j alors que la série réalisée dans les mêmes conditions, mais avec de la tourbe âgée de 14 semaines (courbe 5) montre un taux maximal une demie fois plus élevé ($0,47 \pm 0,09$ mg/L.j).

La différence entre les pourcentages finaux de minéralisation obtenus après 35 jours est aussi notable (54 ± 3 % pour la courbe 4 et 68 ± 5 % pour la courbe 5). Cependant, il est impossible de savoir si le pourcentage final plus faible obtenu avec la tourbe âgée de 8 semaines est dû au fait qu'un plus grand nombre de bactéries a utilisé le toluène radiomarké pour des fins de synthèse ou au fait que les micro-organismes ont réellement dégradé une plus faible quantité de toluène.

Il semble cependant que le temps de contact tourbe/contaminant ait eu un effet positif sur l'activité de dégradation des micro-organismes contenus dans les biofiltres. À partir de cette observation, on pourrait supposer qu'en présence de conditions opératoires favorables, les performances de traitement des biofiltres s'amélioreraient dans le temps.

4.3.1.3 Présence du tampon phosphate

La Figure 4.6 montre aussi que l'ajout d'un tampon phosphate dans l'eau souterraine des microcosmes influence la minéralisation du toluène. En effet, lorsque l'eau souterraine ne contient pas de tampon phosphate, le pourcentage total de minéralisation et la vitesse de dégradation sont beaucoup plus faibles qu'en présence de tampon. La comparaison des courbes 3 et 4, toutes deux obtenues avec de la tourbe âgée de

8 semaines, montre bien cet effet. Sans tampon (courbe 4), un taux maximal de minéralisation de 0,3 mg/L.j est observé; moins de 40 % de minéralisation est obtenu après 15 jours, et le plateau ne semble pas encore atteint après 30 jours. Par contre, lorsque l'eau est tamponnée, le taux de minéralisation double, passant à 0,58 mg/L.j; 64 % de minéralisation est atteint après seulement 10 jours et un plateau de près de 70 % est obtenu après environ 20 jours. Deux hypothèses ont été émises pour expliquer cette observation :

- 1) Malgré le fait que la tourbe ait été en contact avec de l'eau souterraine pendant 8 semaines, elle n'a pas été complètement lavée de ses acides humiques et une baisse de pH dans les microcosmes est responsable du ralentissement de la minéralisation :
- 2) Le tampon phosphate sert de nutriment pour les micro-organismes.

La première hypothèse a été rejetée : le suivi du pH a été fait dans un microcosme contrôle pendant plus d'un mois et le pH n'a jamais chuté en dessous de 6.5. Il a donc été conclu que ce n'était pas l'abaissement de pH qui était responsable du ralentissement de la minéralisation, mais bien l'absence d'ions phosphate nécessaires à la croissance microbienne.

Ainsi, l'ajout de tampon phosphate, tout comme l'emploi d'eau souterraine synthétique contenant des ions phosphate, auront eu pour effet de stimuler la croissance microbienne et, par conséquent, la consommation de contaminant.

4.3.1.4 Présence d'oxyde de fer et quantité de nutriments disponible

Un des résultats intéressants de la Figure 4.6 est que la tourbe neuve dans l'eau souterraine du terrain tamponnée (courbe 2) dégrade plus que toutes les autres séries

contenant de la tourbe acclimatée. Pour expliquer cette observation, deux hypothèses ont été avancées :

- 1) le colmatage des cubes de tourbe par l'oxyde de fer et autres dépôts minéraux aura eu pour effet de diminuer la surface de contact tourbe/eau contaminée;
- 2) après 8 semaines passées dans un biofiltre en contact constant avec de l'eau souterraine, la tourbe a été lavée des nutriments qu'elle contenait initialement, ce qui a ralenti l'activité microbienne.

L'hypothèse de mortalité des micro-organismes suite au contact intensif d'eau souterraine fortement contaminée est rejetée compte tenu des problèmes de colmatage du système par de la biomasse...

Pour vérifier si l'accumulation de fer dans les biofiltres influençait la capacité de minéralisation de la tourbe granulaire, deux séries de microcosmes ont été suivies avec de la tourbe provenant d'un biofiltre ayant opéré pendant 8 semaines. Les courbes obtenues sont illustrées à la Figure 4.7.

La première série contenait des cubes de tourbe n'ayant pas accumulé de fer et la seconde contenait des morceaux de tourbe particulièrement colmatés par de l'oxyde ferrique.

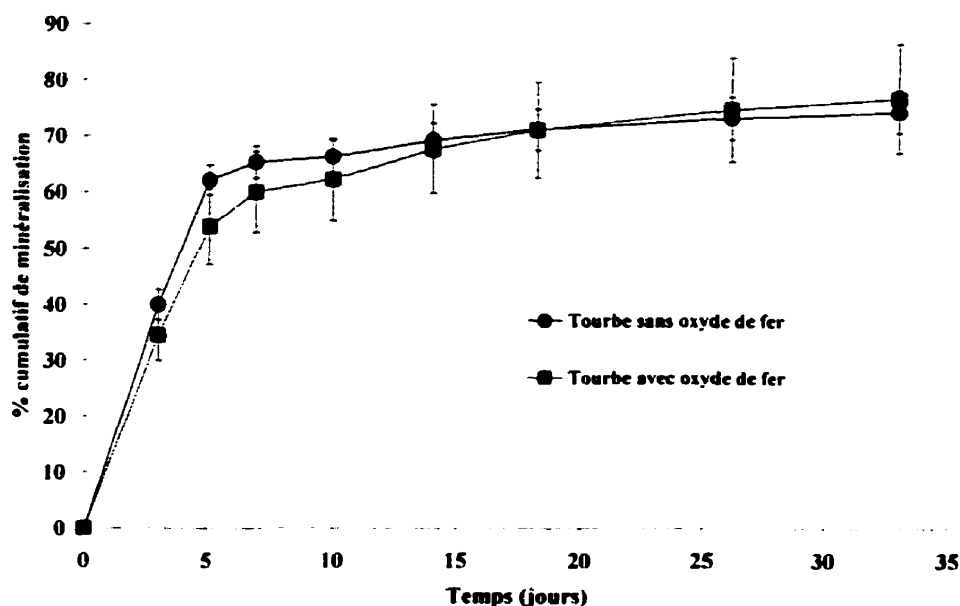


Figure 4.7 : Minéralisation du ^{14}C -toluène à 10°C en conditions aérobies par de la tourbe du terrain (âgée de 8 semaines) dans de l'eau souterraine du terrain tamponnée.

Les courbes de minéralisation obtenues avec et sans fer sont les mêmes, puisque les écarts-types des deux courbes se chevauchent du début à la fin. Dans les deux cas, un temps de latence inférieur à 3 jours est observé, suivi d'un taux maximal de minéralisation de $51,6 \pm 0,9$ mg/L.j et d'un pourcentage final cumulatif de 75 ± 10 %. La présence de fer sur les cubes de tourbe n'affecte donc pas son activité microbienne (du moins lorsqu'il y a présence de phosphate dans l'eau).

Cette conclusion vient donc infirmer la première hypothèse avancée plus haut, disant que le colmatage des cubes de tourbe par l'oxyde de fer était responsable des moins bonnes performances de minéralisation en présence de tourbe acclimatée qu'en présence de tourbe neuve (Figure 4.6). Ce faisant, la seconde hypothèse devait être vérifiée.

Pour vérifier dans quelle proportion les nutriments contenus dans la tourbe granulaire étaient lavés dans le temps, des analyses chimiques ont été réalisées sur trois échantillons de tourbe. Le premier était constitué de tourbe neuve, telle que reçue du fabricant. Le second était composé de tourbe « neuve », ayant été lavée en continu pendant 14 jours avec de l'eau distillée. Le dernier était un échantillon de tourbe provenant d'un des biofiltres pilotes lors de leur démantèlement après 22 semaines d'opération. Les résultats de ces analyses sont présentés au Tableau 4.5.

Tableau 4.5 : Analyses chimiques des nutriments contenus dans la tourbe granulaire

PARAMÈTRES	LD	TOURBE NEUVE	TOURBE « NEUVE » LAVÉE	TOURBE ÂGÉE DE 22 SEMAINES
COT (%)	0.1	50	50	40
N-NH ₄ (mg/kg)	6	410	190	1 150
NO ₂ -NO ₃ (mg/kg)	2	35	< LD	< LD
o-PO ₄ (mg/kg)	2	< LD	< LD	< LD

NOTE : LD : Limite de détection;
 N-NH₄ : azote ammoniacal (en N)
 o-PO₄ : orthophosphate soluble (en P)

COT : Carbone organique total
 NO₂-NO₃ : nitrite et nitrate solubles (en N)

À partir du Tableau 4.5, il est d'abord possible de constater l'absence totale d'orthophosphate soluble, forme de phosphore assimilable par les bactéries (Benefield et Randall, 1980), dans la tourbe granulaire, neuve ou usagée. Ceci confirme la conclusion tirée au paragraphe 4.3.1.3, disant que le tampon phosphate, lorsqu'il est ajouté à l'eau des microcosmes, sert de nutriment aux micro-organismes.

La seconde observation concerne les nitrite et nitrate solubles. Alors que 35 mg/kg est mesuré dans la tourbe neuve, aucune trace n'est détectée dans les deux autres échantillons. Les NO₂-NO₃ auront donc été lavés (ou peut-être consommés en absence d'oxygène) au cours des deux premières semaines de biofiltration. Cette observation vient appuyer la seconde hypothèse avancée plus haut, selon laquelle un lavage des

nutriments dans la tourbe du terrain expliquerait les moins bonnes performances de minéralisation que celles obtenues en présence de tourbe neuve.

Ensuite, il est intéressant de noter qu'une accumulation (ou une production) d'azote ammoniacal a eu lieu dans la tourbe provenant du terrain. Cette augmentation notable peut sans doute être associée à la dégradation de la matière organique contenue dans la tourbe granulaire. En effet, lors des réactions de « désamination » se produisant au cours de la dégradation de la matière organique, des ions ammonium sont libérés (Benefield et Randall, 1980). De plus, l'eau souterraine filtrée contient 2 mg/L d'azote ammoniacal, ce qui représente une autre source d'ions ammonium (NH_4^+). Une des raisons possibles de l'accumulation d'ions dans la tourbe granulaire est l'importante capacité d'échange cationique (CEC) de la tourbe de sphaigne (150-250 meq/100 g; Tableau 3.1). En général, une CEC élevée (entre 200 et 400 meq/100 g) empêche le lessivage des cations (EPA, 1984).

Enfin, le carbone organique total (COT) peut servir d'indicateur de la quantité de matière organique présente dans la tourbe granulaire (Benefield et Randall, 1980). Selon les résultats d'analyses obtenus, seulement 10 % du COT aurait été consommé au cours des 22 semaines de biofiltration. La principale source de carbone employée par les micro-organismes aura donc été les composés de l'essence présents dans l'eau souterraine. Cette constatation est intéressante, car elle signifie que la tourbe elle-même prend un certain temps à se dégrader, ce qui pourrait vouloir dire qu'elle ne serait pas à changer trop souvent.

4.3.2 Minéralisation de tous les composés BTEX

Après 14 semaines d'opération sur le terrain, toujours aucune biodégradation substantielle n'était observée dans les biofiltres pilotes à cause du manque d'oxygène dissous. Afin de vérifier la présence d'activité microbienne, de la tourbe granulaire a

été prélevée des biofiltres pour tester sa capacité à minéraliser l'ensemble des composés BTEX en microcosmes. Les écarts-types ont été calculés à partir de triplicatas et la concentration initiale de chacun des BTEX était de 4,3 mg/L. Les résultats obtenus sont présentés à la Figure 4.8.

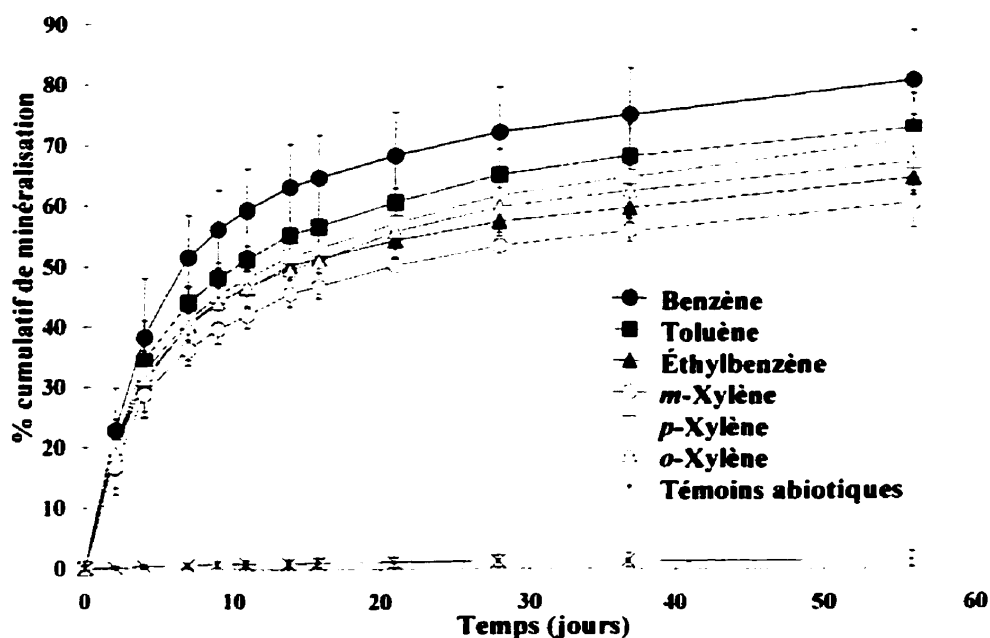


Figure 4.8 : Minéralisation de tous les composés BTEX radiomarqués à 10°C en conditions aérobies, en présence de tourbe granulaire acclimatée (14 semaines) et d'eau souterraine du terrain, non tamponnée.

Comme pour les essais précédents, les paramètres caractéristiques de chacune des courbes ont été calculés et sont présentés au Tableau 4.6.

Tableau 4.6 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.8

COMPOSÉ	TEMPS DE LATENCE (JOURS)	TAUX MAXIMAL DE MINÉRALISATION (%/J) (MG/L.J)		% FINAL DE MINÉRALISATION
Benzène	< 2	11 ± 4	0,5 ± 0,2	81 ± 8
Toluène	< 2	11 ± 2	0,5 ± 0,1	73 ± 6
Éthylbenzène	< 2	9 ± 4	0,4 ± 0,2	65 ± 2
<i>m</i> -Xylène	< 2	9 ± 3	0,4 ± 0,1	60 ± 8
<i>p</i> -Xylène	< 2	10 ± 2	0,4 ± 0,1	71 ± 4
<i>o</i> -Xylène	< 2	9 ± 3	0,4 ± 0,1	67 ± 5

Pour tous les composés BTEX, aucun temps de latence n'a été noté. Cette première observation montre que, malgré l'absence d'oxygène dissous dans l'eau souterraine du terrain et les fortes concentrations en hydrocarbures aromatiques, les micro-organismes présents dans les biofiltres étaient toujours actifs et nombreux à la 14^{ème} semaine.

La comparaison des taux maximums de minéralisation et de l'allure des courbes montre aussi que tous les BTEX ont été biodégradés à la même vitesse. Enfin, un plateau de 70 ± 10 % a été obtenu en moyenne, après environ 30 jours d'essai. Ainsi, les six composés cibles ont été dégradés exactement de la même façon, et la différence entre les pourcentages finaux de minéralisation peut s'expliquer par les différents rendements (synthèse cellulaire/respiration) de chaque produit.

Les résultats présentés dans Martineau *et al.* (1999) comparaient la capacité de minéralisation de la tourbe âgée de 14 semaines en biofiltre (Figure 4.8) avec celle de la tourbe neuve dans de l'eau souterraine synthétique avec et sans essence (essais effectués par Annick Tétreault, à la chaire CRSNG en bioprocédés d'assainissement des sites). Une des conclusions tirées de cette comparaison était que l'effet de l'acclimatation dans les biofiltres était particulièrement marqué dans le cas de la

minéralisation du *p*- et du *m*-xylène. En effet, les essais avec la tourbe neuve ne montraient aucun signe de minéralisation après 40 jours alors que 60 % de minéralisation était obtenu avec la tourbe acclimatée, et ce, malgré le fait que l'eau souterraine ne contenait pas de phosphate ajouté. Pour cette raison, l'expérience suivante a été réalisée avec du *p*-xylène radiomarké.

4.3.3 Apport des diverses populations bactériennes sur le traitement

Au cours des essais de terrain, des problèmes constants de colmatage liés à la production massive de biomasse dans le bassin aéré et dans les conduites ont été rencontrés. Comme les micro-organismes provenant de l'eau souterraine ne semblaient pas avoir de difficulté à croître, et que malgré cela, aucune biodégradation substantielle n'était notée au sein des biofiltres, la question de l'apport des populations bactériennes sur le traitement s'est posée.

Pour déterminer quelle part de la minéralisation observée dans les microcosmes précédents pouvait être associée à chacune des flores bactériennes présente, quatre séries de microcosmes ont été réalisées avec du *p*-xylène radiomarké comme contaminant. Lors de ces essais, l'eau souterraine n'était pas tamponnée. Pour ne pas qu'un abaissement de pH affecte les micro-organismes, la tourbe neuve employée dans la série 1 a été lavée en continu pendant 14 jours avec de l'eau distillée. Les résultats obtenus sont présentés à la Figure 4.9. Toutes les courbes ont été tracées à partir de triplicatas et la concentration initiale de *p*-xylène dans l'eau des microcosmes était de 4,3 mg/L. Comme précédemment, les abréviations TN, T 22 sem, EST et ESA retrouvées dans la légende signifient : tourbe neuve, tourbe après 22 semaines de biofiltration; eau souterraine du terrain et eau souterraine provenant du bassin aéré.

Rappelons que les microflore à l'étude étaient :

- 1) les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire;
- 2) les micro-organismes indigènes de l'eau souterraine contaminée;
- 3) les micro-organismes indigènes de l'eau souterraine, stimulés par l'aération;
- 4) la population microbienne se trouvant sur la tourbe granulaire après 22 semaines de biofiltration (micro-organismes indigènes acclimatés et bioaugmentés).

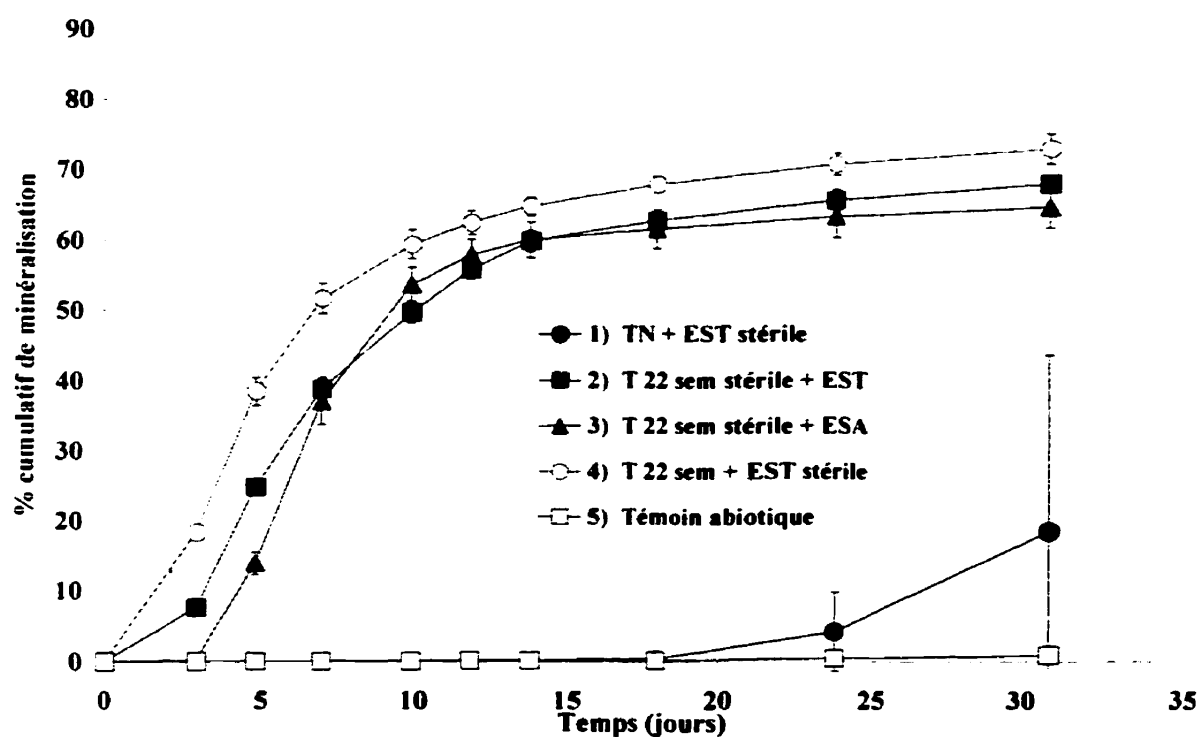


Figure 4.9 : Comparaison de l'activité de minéralisation du ^{14}C -*p*-xylène à 10 °C, en conditions aérobies, par les micro-organismes de la tourbe granulaire et/ou de l'eau souterraine.

Les paramètres caractérisant chacune des courbes sont présentés au Tableau 4.7.

Tableau 4.7 : Paramètres caractérisant les courbes de minéralisation illustrées à la Figure 4.9

NO SÉRIE	TEMPS DE LATENCE (JOURS)	TAUX MAXIMAL DE MINÉRALISATION (%/J)	TAUX MAXIMAL DE MINÉRALISATION (MG/L.J)	% FINAL DE MINÉRALISATION
1	17	2 ± 3	$0,1 \pm 0,1$	18 ± 25
2	< 3	$9,1 \pm 0,5$	$0,39 \pm 0,02$	68 ± 1
3	3	11 ± 1	$0,47 \pm 0,04$	65 ± 3
4	< 3	$10,6 \pm 0,6$	$0,46 \pm 0,03$	73 ± 2

D'abord, il faut mentionner que les témoins abiotiques n'ont affiché aucun signe de minéralisation, ce qui montre que les stérilisations sélectives ont bien fonctionné et que les résultats obtenus proviennent bel et bien des populations microbiennes visées.

L'observation des temps de latence (Figure 4.9) permet d'effectuer plusieurs constations :

- ✓ Les micro-organismes provenant de l'eau souterraine du terrain (courbe 2) et de la tourbe granulaire âgée de 22 semaines (courbe 4) sont déjà acclimatés ou en nombre suffisant pour effectuer la minéralisation du contaminant sans temps de latence.
- ✓ Fait étonnant, la flore microbienne issue du bassin aérée (courbe 3) présente un temps d'acclimatation de 3 jours. Cependant, il est important de souligner que la biomasse ayant servi d'inoculum dans ces microcosmes avait été échantillonnée plusieurs semaines avant le début des essais et conservée à 4 °C. Cette étape de réfrigération aura donc ralenti le métabolisme des bactéries, faisant en sorte qu'un temps d'activation a été nécessaire.
- ✓ Les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire neuve (courbe 1), n'ayant jamais vu d'hydrocarbures aromatiques, ont présenté un temps de latence de

17 jours. Il s'agit d'une période raisonnable, si l'on considère que le traitement d'eau souterraine visé doit fonctionner en continu pendant plusieurs mois ou années. De plus, une fois la première acclimatation effectuée, l'ajout de nouveau contaminant devrait amener une minéralisation beaucoup plus rapide (Alexander, 1994; Forget, 1997). Cette expérience aurait d'ailleurs été fort intéressante, mais n'a pas pu être réalisée, faute de temps. Notons que suite à la période de latence, une minéralisation a été observée, mais seulement dans deux des trois triplicatas, ce qui explique l'écart-type démesuré.

En second lieu, on constate que des pourcentages finaux et des taux maximums de minéralisation très semblables (67 % et 0,44 mg/L.j en moyenne) ont été obtenus pour les courbes 2, 3 et 4. Ceci indique que l'activité microbienne est à peu près la même dans toutes ces séries. Ainsi, lorsqu'elle est en présence de tourbe granulaire, la microflore provenant de l'eau souterraine (issue du bassin aéré ou non), minéralise le ^{14}C -*p*-xylène tout aussi bien que les micro-organismes de la tourbe après 22 semaines passées dans un biofiltre. Cette observation, ajoutée au fait que les essais réalisés avec de l'eau souterraine et des billes de verre n'ont présenté que de très faibles taux de minéralisation du ^{14}C -toluène (paragraphe 4.3.1.1 : « Présence de micro-organismes adaptés »), montrent que la tourbe granulaire sert de support pour les micro-organismes provenant de l'eau souterraine.

Si l'apport des micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire, acclimatés par leur séjour dans les biofiltres, est difficile à établir, l'importance de la tourbe granulaire en tant que support est incontestable, ce qui est excellent pour un milieu filtrant. De plus, les microcosmes donnent un aperçu de l'état de la biomasse, mais n'informent en rien sur les concentrations cellulaires. Pour cette raison, des comptes bactériens ont été effectués.

4.3.4 Dénombrement des micro-organismes hétérotrophes totaux (NPP)

Le dénombrement des micro-organismes hétérotrophes totaux a été effectué sur des échantillons d'eau souterraine pris à l'entrée et à la sortie des biofiltres, de même que sur des échantillons de tourbe granulaire au début et à la fin des essais pilotes. Les résultats obtenus sont présentés au Tableau 4.8. Puisqu'il s'agit d'une méthode statistique, l'intervalle de confiance de 95 % est aussi inclus.

Tableau 4.8 : Résultats des comptes par la méthode du NPP

ÉCHANTILLONS	DÉNOMBREMENT	INTERVALLE DE CONFIANCE (95 %)	
Eau souterraine	cell./mL		
Eau souterraine (sem 3)	3×10^2	1×10^2	1×10^3
Eau souterraine avant aération (sem 22)	8×10^3	3×10^3	3×10^4
Eau souterraine du bassin aéré (sem 22)	3×10^5	1×10^5	1×10^6
Tourbe granulaire	cell./g sec		
Tourbe granulaire neuve	6×10^7	3×10^7	2×10^8
Tourbe granulaire 22 semaines	7×10^8	3×10^8	2×10^9

Les dénombrements bactériens effectués sur des échantillons d'eau souterraine à deux moments (après 3 et 22 semaines d'essai) ont présenté des concentrations microbiennes de l'ordre de 10^2 et 10^3 cell./mL respectivement. Il s'agit de valeurs assez typiques pour ce genre de milieu (Nyer *et al.*, 1996).

À la sortie du bassin aéré (à la 22^{ième} semaine), la concentration cellulaire était passée à 10^5 cell./mL. Ceci montre que la croissance de biomasse dans le réservoir tampon avait une grande influence sur la quantité de bactéries dans l'eau alimentée aux biofiltres, puisqu'on y retrouvait 100 à 1 000 fois plus de micro-organismes qu'avant l'aération. Il s'agit d'un aspect intéressant pour la dégradation des BTEX, mais problématique du

fait que la croissance se poursuivait partout dans le système (conduites, distributeurs, etc.).

Enfin, les dénombrements effectués sur de la tourbe neuve et après 22 semaines présentent des concentrations cellulaires de l'ordre de 10^7 et 10^8 cell./g sec respectivement. Le séjour de 22 semaines dans les biofiltre n'aura donc augmenté la quantité de micro-organismes que d'un facteur 10. Bien que l'augmentation en nombre ne soit pas énorme, il est certain qu'une sélection et une croissance préférentielle des micro-organismes « dégradeurs » d'hydrocarbures se soit produite. La différence entre les temps de latence observés lors de la minéralisation du ^{14}C -*p*-xylène en présence de tourbe neuve et âgée de 22 semaines en est la preuve (sous-section 4.3.3).

Il est donc fort probable que les micro-organismes provenant de l'eau souterraine servent initialement à inoculer la tourbe, mais l'acclimatation des populations microbiennes indigènes du milieu filtrant n'est pas à négliger. En effet, les concentrations cellulaires dans la tourbe neuve sont 10 000 à 100 000 fois plus élevées que dans l'eau souterraine seule. Du fait que les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire ont montré des temps d'acclimatation assez court en microcosmes (7 jours pour le toluène et 17 jours pour le *p*-xylène), l'importante concentration cellulaire présente du milieu filtrant neuf peut s'avérer extrêmement intéressant lors du traitement d'une eau ne contenant pas ou peu de biomasse.

4.4 ESSAIS DE TERRAIN : SUIVI DU COMPORTEMENT HYDRODYNAMIQUE

L'effet du vieillissement du milieu filtrant sur l'activité microbienne au sein des biofiltres a été caractérisé. Pour compléter le suivi de la biofiltration dans le temps, il était primordial de caractériser le comportement hydrodynamique des bioréacteurs, de manière à vérifier la stabilité mécanique du milieu filtrant sur une longue période. Les

résultats des essais hydrostatiques et des essais de traçage sont présentés dans cette section.

4.4.1 Caractérisation hydrostatique dans le temps

Des essais hydrostatiques (en absence d'écoulement) ont été effectués sur de la tourbe neuve et de la tourbe âgée de 22 semaines. Les résultats obtenus lors de ces essais sont présentés au Tableau 4.9. Les incertitudes ont été déterminées à partir des erreurs de mesures, selon la méthode des dérivées partielles (voir calcul en annexe F).

Tableau 4.9 : Résultats des essais hydrostatiques

PARAMÈTRE	TOURBE NEUVE	TOURBE 22 SEM
Porosité (n)	$0,93 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$
<u>RÉTENTIONS</u> : (moyenne sur 3 essais)		
Solide (ϵ_s)	$0,07 \pm 0,03$	$0,09 \pm 0,03$
Liquide statique (ϵ_{Ls})	$0,47 \pm 0,09$	$0,66 \pm 0,09$
Liquide dynamique (ϵ_{Ld})	$0,41 \pm 0,06$	$0,19 \pm 0,06$
TOTAL	$1,0 \pm 0,2$	$1,0 \pm 0,2$

La méthode employée pour déterminer les rétentions introduit un certain degré d'imprécision, ce qui se reflète sur l'ampleur des incertitudes. De plus, elle sous estime les rétentions liquides, car des bulles d'air peuvent rester coincées dans la tourbe lors du remplissage des pores et interstices par de l'eau. Malgré tout, les résultats sont présentés ici à titre comparatif. En effet, puisque les essais ont été réalisés de la même manière sur les deux échantillons, et que l'erreur associée aux deux essais est la même, il est possible de comparer les résultats afin d'estimer une tendance.

D'après les résultats obtenus, un lit de tourbe granulaire neuve contient environ 7 % (v/v) de solide, 47 % (v/v) d'eau retenue dans les pores et interstices de la tourbe.

et 41 % (v/v) d'eau libre et d'air. Ces proportions indiquent à nouveau que la tourbe granulaire est un matériau extrêmement poreux. D'ailleurs, la porosité calculée lors de ces essais est, en moyenne, de 93 %, ce qui confirme le résultat obtenu en génie minéral (Tableau 4.2).

Après 22 semaines passées dans les biofiltres, la tourbe granulaire avait grandement changé d'aspect. Le lit filtrant, initialement composé de morceaux de tourbe bien cubiques, s'était transformé en un bloc plus ou moins monolithique de tourbe compactée. En effet, au cours des semaines de biofiltration, les granules se sont partiellement égrainés et les interstices entre les cubes de tourbe se sont remplis de miettes (des photographies sont présentées à l'annexe C). Malgré cette décomposition partielle de la structure du milieu filtrant, il est intéressant de noter que la porosité globale du lit n'a pas réellement changé (91 %, en moyenne). Par conséquent, même après avoir accumulé des dépôts ferriques et de la biomasse, la tourbe granulaire est restée un milieu hautement poreux.

Par ailleurs, le vieillissement du milieu filtrant a eu un effet particulièrement notable sur les rétentions liquides. Au cours des essais de terrain, la proportion de liquide dynamique est passée de 41 ± 6 % à 19 ± 6 %, ce qui signifie que le volume servant à l'écoulement de l'eau a diminué de moitié. De plus, comme la proportion de solide n'a pas changé de manière significative, les biofiltres se sont retrouvés remplis à 66 % d'eau stagnante (liquide statique). Avec de tels résultats, on peut s'attendre à une mauvaise distribution du fluide au sein du milieu filtrant, car l'augmentation drastique du volume de liquide statique indique la formation de chemins préférentiels par les volumes restants pour l'eau libre. De surcroît, la faible proportion de liquide dynamique rend difficile l'aération de l'ensemble du milieu filtrant, favorisant l'apparition de zones anaérobies.

4.4.2 Caractérisation hydrodynamique des biofiltres

Pour estimer l'effet du vieillissement du milieu filtrant sur les caractéristiques hydrodynamiques des biofiltres, des essais de traçage ont été réalisés sur les deux configurations de biofiltres, au départ et après 19 semaines d'opération, à un TCH de $10 \text{ m}^3/\text{m}^2.\text{j}$.

De façon générale, les informations fournies par un essai de traçage (ou une courbe de DTS) peuvent servir à :

- 1- Diagnostiquer les écoulements pathologiques, afin de modifier les équipements « disfonctionnels » et d'améliorer les performances du réacteur;
- 2- Déterminer le temps de résidence moyen du liquide dans le réacteur;
- 3- Produire des paramètres (souvent τ et σ^2) qui, intégrés à un modèle, permettent de caractériser l'écoulement et de prédire les performances du réacteur.

Ainsi, les essais de traçage devaient permettre, d'une part, de caractériser l'écoulement dans des lits de tourbe granulaire et, d'autre part, d'estimer le temps de résidence moyen de l'eau à traiter dans les biofiltres (ce qui aurait pu servir à établir la cinétique de biodégradation dans le cas où le traitement en continu aurait fonctionné). Ces deux aspects sont présentés dans les pages qui suivent. Une modélisation de l'écoulement après 19 semaines a aussi été effectuée à l'aide d'un modèle multiparamétrique.

4.4.2.1 Moments des courbes de DTS

Dans les paragraphes qui suivent, les courbes de DTS sont présentées sous forme adimensionnelle. Comme la fonction E_0 et le temps de résidence adimensionnel (θ)

sont obtenus à partir des moments de la courbe, il a été jugé plus simple de présenter d'abord un résumé de ces paramètres (Tableau 4.10).

Tableau 4.10 : Temps de résidence (τ) et variances (σ^2) des courbes de DTS obtenues à 10 m³/m².j

	τ (min)	σ^2 (min ²)
<u>PERCOLATION</u>		
Initialement (tourbe neuve)	42,2	464,0
Après 19 sem (P1)	30,7	1491,3
Après 19 sem (P2)	68,2	2318,6
<u>SATURÉ ASCENDANT</u>		
Initialement (tourbe neuve)	48,6	854,4
Après 19 sem (S1)	63,3	1654,1
Après 19 sem (S2)	94,5	1248,3

Sans l'allure des courbes de DTS, ces paramètres ont assez peu de signification. L'analyse des résultats est donc réalisée plus loin.

4.4.2.2 Caractérisation de l'écoulement en percolation

Les distributions des temps de séjour obtenues avec les biofiltres en percolation après 0 et 19 semaines d'opération sont présentées à la Figure 4.10. Rappelons que θ représente le temps de résidence adimensionnel (t/τ) et E_θ la fonction de DTS adimensionnalisée ($E \cdot \tau$).

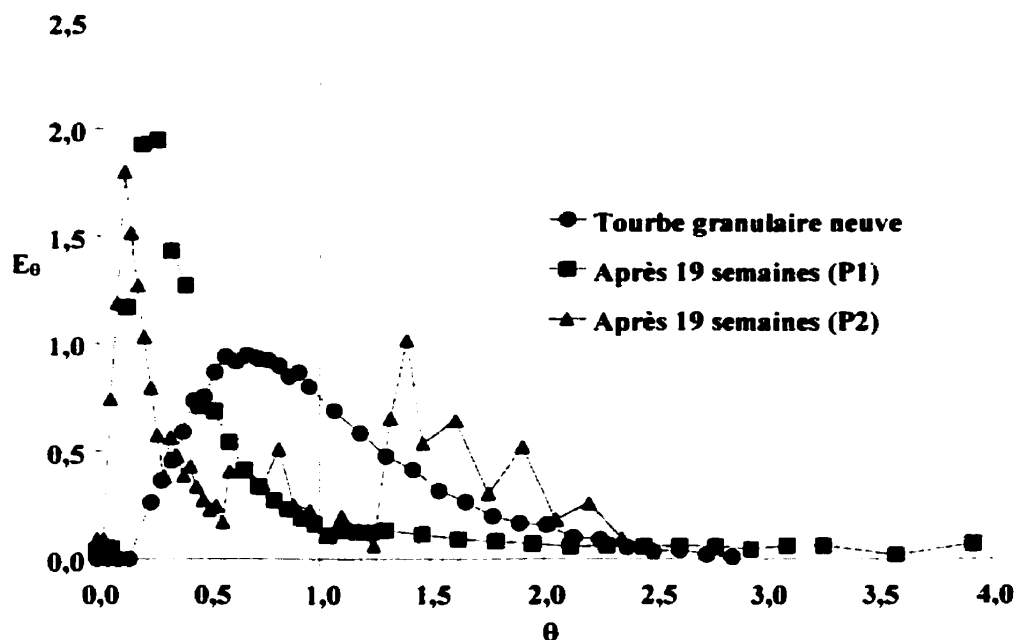


Figure 4.10 : Effet du vieillissement du milieu filtrant sur la DTS dans les biofiltres en percolation.

4.4.2.2.1 Analyse de la DTS initiale en percolation

En présence de tourbe granulaire neuve, la courbe de DTS montre qu'au départ, l'écoulement dans les biofiltres en percolation était de type intermédiaire. En effet, un certain mélange, illustré par l'étalement de la courbe, a été noté. Par contre, lors de cet essai, le système de distribution comportait toujours la plaque perforée et le distributeur en « H ». Ces deux éléments devaient introduire une bonne part de mélange, avant même que le liquide n'ait atteint le milieu filtrant, mais l'élimination de cet effet n'a pas été possible. Du reste, avec la courbe obtenue, il a été considéré que l'écoulement au sein du milieu filtrant neuf était relativement près de l'écoulement piston.

L'arrivée un peu hâtive du pic (avant $\theta = 1$) de traceur est généralement associée à des zones mortes et/ou chemins préférentiels dans le bioréacteur (Levenspiel, 1972). Pour estimer le volume mort, les volumes utiles théorique et observé ont été comparés. Le

premier correspond à tout l'espace théoriquement disponible pour la circulation du liquide, et se calcule en multipliant le volume total du milieu filtrant (155 L; Figure 3.3) par sa porosité (90,2 %; Tableau 4.2). On obtient ainsi un volume utile théorique de 140 L. Le volume utile observé est obtenu en multipliant le débit de liquide (1.8 L/min; sous-section 3.3.3) par le temps de résidence moyen mesuré à l'aide de la DTS (42.2 min; Tableau 4.9). Ce dernier présente une valeur de 76 L. Ainsi, un volume mort de 64 L, soit 41 % du volume total de milieu filtrant, était présent initialement dans les biofiltres en percolation. Cette valeur semble très élevée, mais était prévisible, étant donné les proportions de liquide statique et dynamique déterminées au cours des essais hydrostatiques. En effet, d'après ces essais, entre 38 et 56 % du volume total aurait dû comporter du liquide statique. L'arrivée hâtive du pic de traceur s'explique donc par la nature même du milieu filtrant et non pas par une mauvaise distribution.

Ensuite, la présence d'une queue (phénomène appelé « tailing » en anglais) est souvent observée lorsque le traceur est alimenté au réacteur par une injection instantanée (Fruzer et Michell, 1970; Michell et Furzer, 1972). L'importante porosité de la tourbe granulaire pourrait aussi expliquer l'asymétrie de la courbe, car les milieux « mouillables » affectent les réponses de DTS (Van Swaaij *et al.*, 1969). Ce phénomène est associé à la diffusion du traceur dans le liquide interne présent dans les pores et interstices du matériel catalytique (la tourbe granulaire dans le cas présent).

Suite à cet essai de traçage, il a été conclu que le biofiltre en percolation ne comportait pas de problème hydrodynamique grave et qu'avec le temps de résidence moyen de 42.2 minutes obtenu (Tableau 4.10) il s'agissait d'une unité pilote intéressante à tester sur le terrain.

4.4.2.2.2 Effet du vieillissement du milieu filtrant sur l'écoulement en percolation

Après 19 semaines d'opération, la distribution des temps de séjour dans les biofiltres en percolation avait beaucoup changé (Figure 4.10). Pour les deux unités, l'apparition extrêmement rapide du pic de traceur montre à quel point les zones mortes se sont intensifiées. Une partie de l'eau alimentée aux biofiltres sortait donc très rapidement, ne laissant presque plus de temps pour que la biodégradation puisse avoir lieu. Dans le cas de P1, le liquide passait en moyenne 30 minutes (Tableau 4.10) dans le biofiltre, ce qui représente une diminution de 25 % par rapport au τ initial. Pour ce qui est de P2, un τ de 68.2 minutes a été calculé (Tableau 4.10). Cette valeur élevée est cependant due aux multiples pics mesurés à la sortie : une telle DTS indique que plusieurs chemins préférentiels parallèles étaient présents dans cette unité (Levenspiel, 1972). Les problèmes d'opération rencontrés avec les distributeurs de débit (décrits au paragraphe 4.2.2.3) sont sans doute à l'origine de la mauvaise distribution, puisque avec seulement quelques points d'alimentation fonctionnels, le liquide devait inmanquablement circuler par des chemins préférentiels.

L'intensification des volumes morts constatée dans les courbes de DTS est appuyée par les essais hydrostatiques montrant l'importante diminution du liquide dynamique au profit du liquide statique. Il y a fort à parier que l'accumulation de biomasse et de dépôts ferriques dans la tourbe granulaire a aussi influencé les performances hydrodynamiques de ces biofiltres.

De plus, l'allure des courbes obtenues après 19 semaines d'opération semble indiquer qu'un mélange assez important se produit dans le milieu filtrant. En effet, la diminution exponentielle de la concentration de traceur dans le temps n'est pas sans rappeler les courbes théoriques des réacteurs parfaitement mélangés (Levenspiel, 1972).

Afin de quantifier les volumes morts et la proportion de mélange dans les biofiltres, une représentation schématique du comportement de l'eau est proposée à l'aide d'un

modèle multiparamétrique (Figure 4.11). De par cette représentation, le volume total du réacteur (V) est divisé en trois parties, soit un volume mort (V_d), un volume en écoulement piston (V_p) et un volume de mélange (V_m).

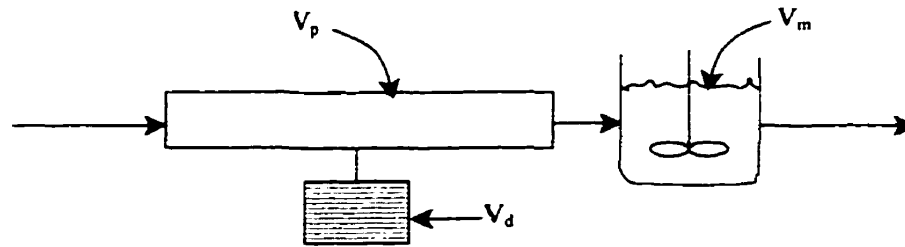


Figure 4.11 : Schématisation de l'écoulement de l'eau dans les biofiltres en percolation.

Dans un tel système, la réponse à une injection de traceur peut être calculée à partir de l'équation 4.1 (Levenspiel, 1972) :

$$E_{\theta}(\theta) = \frac{V}{V_m} \exp \left[-\frac{V}{V_m} \left(\theta - \frac{V_p}{V} \right) \right] \quad (4.1)$$

où les rapports V/V_m et V_p/V sont estimés à l'aide des points expérimentaux, par les relations :

$$\frac{V_p}{V} = \theta, \text{ au début de la sortie du traceur} \quad (4.2)$$

$$\frac{V - V_d}{V} = \bar{\theta}, \text{ i.e. } \theta \text{ lorsque la moitié du traceur est sorti} \quad (4.3)$$

et
$$V = V_p + V_m + V_d \quad (4.4)$$

La courbe de DTS modélisée à partir des résultats expérimentaux obtenus avec P1 est présentée à la Figure 4.12. Notons que les données expérimentales de P2 n'ont pas été

modélisées, puisqu'elles présentent le même comportement que P1, mais avec des chemins préférentiels en plus.

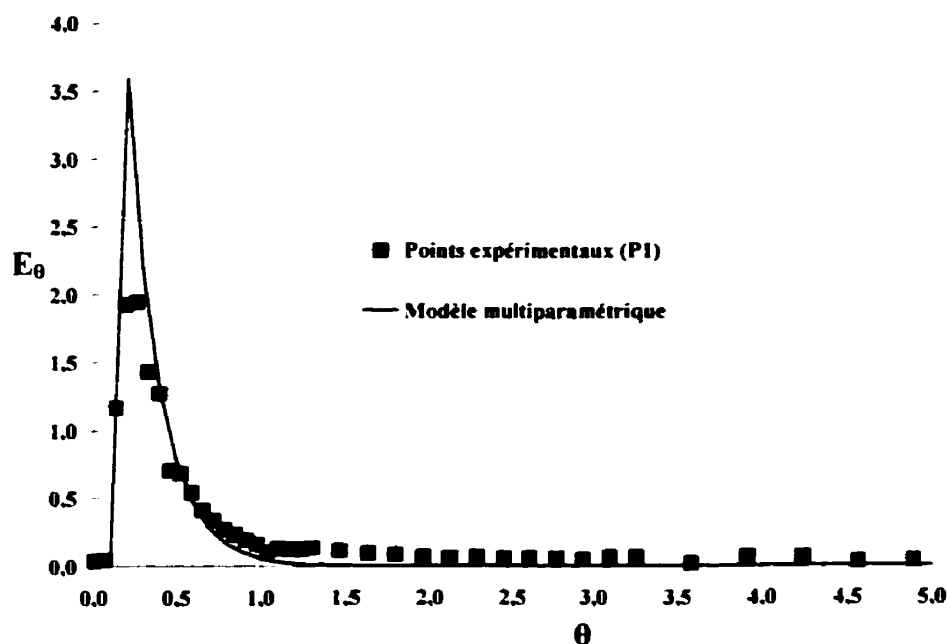


Figure 4.12 : Modélisation de la distribution des temps de séjour dans le biofiltre P1 après 19 semaines d'opération.

L'observation de la Figure 4.12 permet de constater que le modèle multiparamétrique employé décrit de manière assez fiable le comportement du liquide dans le biofiltre P1 après 19 semaines d'opération. D'après ce modèle, les différents volumes au sein du milieu filtrant étaient de 20 L (13 %) en écoulement piston, 30 L (19 %) en écoulement mélangé et 105 L (68 %) de volume mort. Ainsi, plus du deux tiers de la tourbe granulaire était inaccessible à l'eau contaminée. À cause de cela, d'importantes zones anaérobies ont dû se développer dans les biofiltres, ce qui peut expliquer en partie les mauvaises performances de biodégradation obtenues. Enfin, le comportement du liquide dans le reste du biofiltre était de type intermédiaire se rapprochant du parfaitement mélangé, autre phénomène qui a pu nuire à la bonne performance des

unités. Rappelons qu'un écoulement de type piston était visé, parce qu'il permet généralement d'atteindre de meilleurs rendements (Fogler, 1992).

Pour augmenter le volume utile d'un réacteur, Levenspiel (1972) suggère l'ajout de redistributeur et/ou de chicanes pour uniformiser la distribution dans le réacteur. Cette proposition a été prise en compte lors des recommandations sur le design des unités (chapitre 6).

4.4.2.3 Caractérisation de l'écoulement saturé ascendant

Les courbes de DTS obtenues avec les biofiltres saturés à courant ascendant sont présentées à la Figure 4.13.

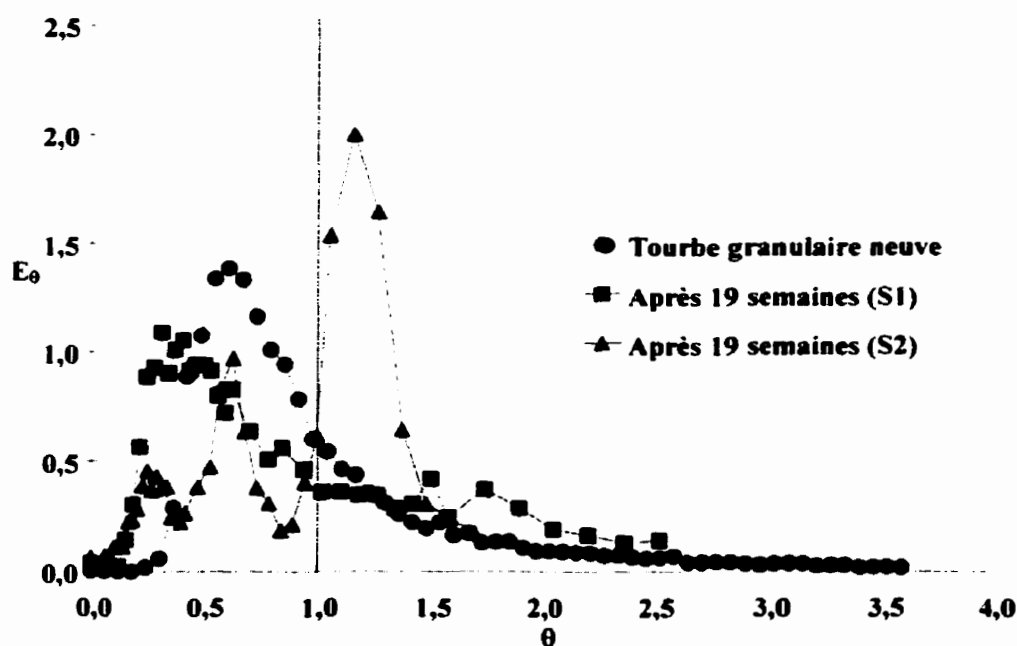


Figure 4.13 : Effet du vieillissement du milieu filtrant sur la DTS dans les biofiltres saturés à courant ascendant.

4.4.2.3.1 Analyse de la DTS initiale avec l'écoulement saturé ascendant

Tout comme dans la configuration en percolation, le biofiltre saturé à courant ascendant présentait au départ une DTS intermédiaire se rapprochant du comportement piston. Le pic de traceur un peu hâtif dénote encore une fois la présence de légères zones mortes au sein du milieu filtrant. L'étirement de la courbe peut aussi s'expliquer par la grande porosité de la tourbe et par le type d'injection du traceur (se référer au sous-paragraphe 4.4.2.2.1 pour plus de détails).

Comme précédemment, un volume mort peut être estimé en comparant les volumes utiles théorique (140 L) et observé (88 L). Ce dernier s'estime à 52 L, ce qui représente 34 % du volume total de milieu filtrant. Ainsi, par rapport aux biofiltres en percolation, une plus grande proportion de la tourbe était visitée par l'eau contaminée. Cette constatation n'est pas étonnante, puisqu'il s'agissait d'un des avantages de la configuration saturée à courant ascendant (voir Tableau 3.4).

Par conséquent, de la même manière qu'avec le biofiltre en percolation, il a été conclu que le biofiltre saturé à courant ascendant ne comportait pas de problème hydrodynamique grave et qu'avec le temps de résidence moyen de 48,6 minutes obtenu (Tableau 4.10) il s'agissait d'une unité pilote intéressante à tester sur le terrain.

4.4.2.3.2 Effet du vieillissement du milieu filtrant sur l'écoulement saturé ascendant

Après 19 semaines de biofiltration, les courbes de DTS obtenues avec les deux biofiltres saturés à courant ascendant étaient très irrégulières. En effet, même entre les duplicatas, les comportements observés étaient assez différents (Figure 4.13).

Par rapport à la courbe initiale, le premier duplicata, S1, montre une sortie un peu plus rapide du pic de traceur, jumelée avec une augmentation importante de l'étalement de la courbe (variance de 1654,1 min² par rapport à 854,4 min²). Ces observations indiquent

qu'en plus de la formation de chemins préférentiels, le mélange du liquide a significativement augmenté dans ce biofiltre. Pour quantifier les proportions de volumes morts et de mélange, le modèle multiparamétrique (équations 4.1 à 4.4) a été employé de nouveau. La valeur de $\bar{\theta}$ (équation 4.3) a cependant dû être modifiée de manière itérative pour que la courbe modélisée représente bien les points expérimentaux observés (Figure 4.14).

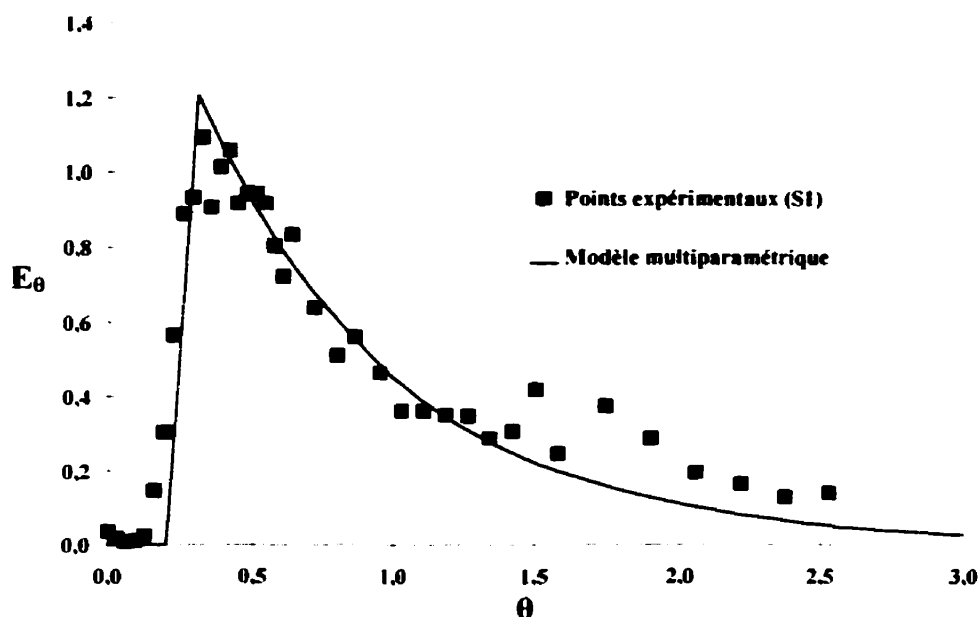


Figure 4.14 : Modélisation de la distribution des temps de séjour dans le biofiltre S1 après 19 semaines d'opération.

D'après le modèle multiparamétrique employé, le biofiltre S1 comportait 10 % (16 L) de volumes morts, 19 % (29 L) d'écoulement piston et 71 % (110 L) d'écoulement mélangé. Il s'agit d'une inversion complète des proportions par rapport au biofiltre en percolation (P1). Ainsi, le principal effet du vieillissement sur l'écoulement de l'eau dans ce biofiltre saturé a été l'intensification du mélange. Il se peut que l'installation d'une plaque perforée sur le dessus du milieu filtrant ait favorisé le brassage de l'eau avant sa sortie de l'unité.

Pour ce qui est de S2, un comportement assez différent est noté. En effet, la DTS permet de constater la présence de pics multiples, indiquant la présence de chemins préférentiels parallèles à l'intérieur de ce biofiltre (Levenspiel, 1972).

En résumé, les deux configurations de biofiltres présentaient initialement des écoulements intermédiaires se rapprochant de l'écoulement piston, avec un peu de volumes morts et de mélange dus à la grande porosité de la tourbe. Après 19 semaines, la fraction de liquide statique dans le milieu filtrant avait significativement augmenté et le comportement hydrodynamique des biofiltres s'en est trouvé détérioré. En percolation, les volumes morts ont pris de l'importance et les problèmes de distribution dus au colmatage des distributeurs ont favorisé l'apparition de chemins préférentiels. Enfin, dans les biofiltres saturés, les plaques perforées servant à empêcher la tourbe granulaire de bloquer les conduites ont eu pour effet d'accentuer le mélange et de former de la recirculation dans le milieu filtrant.

CHAPITRE 5

DISCUSSION GÉNÉRALE

Les résultats obtenus au cours des divers essais réalisés dans le présent projet comportent des implications concernant la technologie de la biofiltration *in situ* et ses applications; l'analyse qui suit se propose d'en cerner les principaux facteurs.

5.1 CARACTÉRISTIQUES INITIALES DE LA TOURBE GRANULAIRE

Les essais préliminaires effectués en laboratoire ont montré que la tourbe granulaire possédait de bonnes caractéristiques pour la biofiltration de l'eau souterraine contaminée par les produits pétroliers.

D'abord, du point de vue de l'activité microbienne il a été montré que les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire pouvaient minéraliser des hydrocarbures aromatiques après un temps d'acclimatation assez court, compte tenu du fait qu'ils n'avaient jamais été en contact avec le contaminant. Les temps de latence observés lors des essais de minéralisation étaient de 7 jours pour le toluène (en présence de phosphate ajouté) et de 17 jours pour le *p*-xylène (sans ajout de nutriment). Pour l'ensemble des courbes obtenues avec la tourbe granulaire neuve, les taux maximums de minéralisation observés se situaient entre 600 et 800 $\mu\text{g C}_7\text{H}_8/\text{L.j}$ (0,6 et 0,8 $\text{mg C}_7\text{H}_8/\text{L.j}$). À cause de l'extrême variabilité des cinétiques en fonction des conditions opératoires et parce que la concentration cellulaire dans l'eau des microcosmes est inconnue, il est assez difficile de comparer de manière rigoureuse ces résultats à d'autres de la littérature (Sturman *et al.*, 1995). Cependant, il peut être intéressant de comparer les ordres de grandeur. Ainsi, pour des microcosmes en conditions aqueuses et faiblement aérées,

mentionnons l'étude de Armstrong *et al.* (1991) qui rapportent des taux de biodégradation du toluène de 1,2 µg/L.j dans de l'eau provenant d'un panache de lixiviats contaminés, et celle de Barker *et al.* (1987) où les taux de dégradation des BTX présentés variaient de 27 à 52 µg/L.j. Dans le cas de microcosmes contenant des sols et présentant des concentrations élevées en oxygène dissous, des taux de biodégradation beaucoup plus élevés ont été rapportés, allant jusqu'à 50 000 µg/L.j (Alvarez et Vogel, 1991; Hutchins, 1991). Les taux de biodégradation obtenus avec la tourbe granulaire neuve dans de l'eau souterraine synthétique se situent au centre de la plage des taux de biodégradation présentés dans la littérature. Compte tenu du fait que la flore bactérienne présente dans ces microcosmes n'était pas adaptée et que l'eau souterraine n'était pas aérée outre mesure, il peut être affirmé, sous toute réserve, qu'il s'agit de résultats intéressants.

Les caractéristiques physiques de la tourbe granulaire neuve étaient aussi très avantageuses. Une conductivité hydraulique de l'ordre de celle du sable ou du gravier (10^{-1} cm/s; Todd, 1980) et une porosité élevée (90.2 %) permettaient de s'assurer que les débits d'alimentation des biofiltres ne seraient pas limités par sa perméabilité, et que l'importante surface spécifique du matériau favoriserait de bons contacts contaminant/micro-organismes (Verheul *et al.*, 1993).

Face à ces résultats encourageants, deux configurations de biofiltres ont été conçues pour leurs avantages respectifs (Tableau 3.4). La configuration en percolation devait favoriser l'aération de l'eau à traiter, alors que le biofiltre saturé à courant ascendant devait assurer un meilleur contact tourbe/micro-organismes/contaminant.

5.2 CONDITIONS DE TERRAIN DIFFICILES ET PROBLÈMES TECHNIQUES

Suite à l'installation du système de biofiltration sur le terrain, les problèmes n'ont pas tardé à se manifester. Les conditions prévalant sur le site n'y étaient pas pour rien. En effet, l'eau souterraine à traiter présentait un défi de taille à cause de plusieurs facteurs, tous interreliés. D'abord, cette eau présente des concentrations importantes en BTEX (10 mg/L au total; Tableau 3.5). L'eau provient en effet d'un puits de récupération, en dessous d'une phase flottante de produits pétroliers dont l'épaisseur va jusqu'à 2.09 cm (données fournies par SNC-Lavalin; voir le plan à l'annexe E). Parce que l'eau à traiter est puisée au cœur du panache de contamination, et à cause de la phase flottante empêchant l'aération potentielle de la nappe phréatique par sa surface (Leahy et Colwell, 1990), des conditions anaérobies y prévalent. À en juger par l'absence de nitrite et nitrate dans l'eau (Tableau 3.5), les conditions d'oxydoréduction dans l'aquifère en sont à la réduction du fer. Comme ce type de réaction transforme le fer(III) en fer(II) (Simard et Des Rosiers, 1980), le fer complexe contenu dans le matériel aquifère a dû être solubilisé, entraînant des concentrations de fer anormalement élevées dans l'eau à traiter. En effet, alors que la concentration moyenne de fer dans les eaux souterraines du Québec est de 0.08 mg/L avec 95 % des valeurs comprises entre 0.002 et 4.2 mg/L et 25 % de probabilité d'obtenir une eau qui contient plus que la limite maximale acceptable (0,3 mg/L) (Simard et Des Rosiers, 1980), l'eau souterraine à traiter en contenait 35 mg/L. Des problèmes de colmatage par l'oxyde ferrique en sont résultés dans les biofiltres et dans le reste du système, problèmes qui ne seraient pas survenus en présence d'une eau ayant un contenu plus représentatif des eaux souterraines québécoises.

De plus, les différentes difficultés techniques rencontrées au cours des essais de terrain (discutées à la section 4.2.2 : « Problèmes techniques ») sont toutes reliées de près ou de loin aux caractéristiques particulières de l'eau à traiter. En effet, lors de l'étude

hydrodynamique réalisée en laboratoire, les biofiltres pilotes ont été alimentés en continu pendant plus d'un mois avec de l'eau du robinet et n'ont jamais présenté de problème de pompage ou de distribution du liquide dans le biofiltre en percolation. Il faut dire que, lors de ces essais, un suivi et un ajustement quotidien du système étaient effectués (enlèvement des morceaux de tourbe flottant à la surface du biofiltre saturé, ajustement du niveau de la plaque perforée, vérification des débits, etc.). Aussi, comme il a déjà été mentionné, l'éloignement du site s'est avéré une difficulté supplémentaire. Du fait qu'une seule visite par semaine était effectuée sur le terrain, un délai était imposé entre la constatation des mauvais fonctionnements, les ajustements au système, et la vérification de leur efficacité. En conséquence, tout le procédé expérimental s'est trouvé ralenti.

5.2.1 Apport en oxygène

Un des problèmes rencontrés lors des essais de terrain était relié à l'aération de l'eau. En effet, de l'oxygène était désiré dans l'eau à l'entrée des biofiltres pour effectuer la biodégradation aérobie des BTEX. Cependant, ces hydrocarbures monoaromatiques n'étaient pas la seule source de demande en oxygène. En plus des BTEX, les hydrocarbures pétroliers (C_{10} - C_{20} principalement), d'autres produits de l'essence et la tourbe granulaire elle-même représentaient des sources de matières organiques supplémentaires et donc une demande biologique en oxygène (DBO) accrue. De surcroît, une partie de l'OD était utilisée lors de l'oxydation du fer(II) en fer(III), ajoutant une demande inorganique à la demande totale en oxygène.

Une demande théorique en oxygène (DTO), correspondant à la quantité d'OD nécessaire à la dégradation de 10 mg/L de BTEX et 3 mg/L de C_{10} - C_{20} et à l'oxydation de 35 mg/L de fer(II), a été estimée à 47 mg O_2 /L. De même, la capacité d'aération maximale du diffuseur d'air a été calculée à 32 mg O_2 /L (le détail des calculs est

présenté à l'annexe F). Ainsi, même en ne tenant pas compte de la quantité d'essence dans l'eau, de la dégradation potentielle de la tourbe granulaire et, possiblement, de la nitrification de l'azote ammoniacal présent dans l'eau souterraine, la quantité d'oxygène requise pour les réactions biotiques et abiotiques considérées était supérieure à la capacité d'aération du diffuseur utilisé. Cette constatation est importante et devra être considérée lors du développement de nouveaux systèmes de biofiltration.

5.2.2 Taux d'enlèvement des BTEX

Un des objectifs de l'essai de terrain était de définir les caractéristiques cinétiques d'enlèvement des BTEX dans des biofiltres alimentés en continu. Mais la difficulté à maintenir des concentrations suffisantes d'oxygène dissous dans l'eau à l'entrée des biofiltres et les bris de pompe (empêchant la prise d'échantillons lorsque l'aération était fonctionnelle), ont rendu impossible la détermination de la cinétique de dégradation des BTEX.

Malgré cela, une courte période de biodégradation a été observée au cours des premières semaines d'opération, montrant des taux d'enlèvement en percolation allant de 50 à 110 mg/L.j¹ et de 48 à 60 mg/L.j dans un des biofiltres saturés à courant ascendant. Par la suite, lorsque de l'oxygène dissous était présent dans l'eau alimentée aux biofiltres, des taux d'enlèvement de 19 à 29 mg/L.j ont été obtenus dans un biofiltre saturé à courant ascendant. Des difficultés techniques ont fait en sorte que des mesures n'ont pas été prises dans les biofiltres en percolation à ce moment.

En comparaison avec les essais de Verheul *et al.* (1993), qui présentaient une capacité d'enlèvement maximale d'hydrocarbures aromatiques de 60 g/m³.h (1 440 mg/L.j) dans

¹ Les taux d'enlèvement, présentés en mg BTEX/h à la section 4.2.3.3 : « Suivi de l'enlèvement des BTEX » sont présentés ici en mg/L.j pour faciliter la comparaison avec la littérature. Un volume de réacteur de 155 L a été considéré.

un filtre à sable de 1 m³ en conditions aérobies, les taux d'enlèvement obtenus dans les biofiltres à tourbe granulaire sont plus faibles. Cependant, dans l'étude de Verheul *et al.* (1993), une aération à co-courant était effectuée dans le filtre, et au cours des 50 premiers jours d'opérations, les taux d'enlèvement obtenus n'étaient pas supérieurs à 15 g/m³.h (360 mg/L.j). De plus, l'étude de Yerushalmi *et al.* (1997), portant sur la biodégradation aérobie de l'essence (22,2 à 74,0 mg/L) dans une bio-barrière de 5,2 L, a présenté des taux d'enlèvement variant entre 4,0 et 13,9 mg/L.j lorsque de la tourbe granulaire était employée comme support bactérien, et de 3,2 à 22,9 mg/L.j avec l'acier inoxydable extrudé. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus dans les biofiltres pilotes de la présente étude, et même légèrement inférieurs.

Ainsi, compte tenu des difficultés à maintenir des conditions opérationnelles constantes (aération et débits), et des faibles concentrations en oxygène dissous dans les biofiltres pilotes (généralement <2 mg/L), les capacités d'enlèvement obtenues (allant jusqu'à 110 mg/L.j) laissent présager qu'en conditions plus favorables, la biofiltration sur tourbe granulaire pour le traitement de l'eau souterraine contaminée aux BTEX serait une technologie efficace.

5.3 EFFETS DU TEMPS SUR LES CARACTÉRISTIQUES DES BIOFILTRES PILOTES

Tout au long des essais de biofiltration sur le terrain, les propriétés de la tourbe granulaire se sont modifiées. À partir des suivis microbiologique et hydrodynamique, plusieurs tendances ont été notées.

5.3.1 Amélioration de l'activité biologique

De façon générale, le temps semble avoir eu un effet positif sur l'activité microbienne au sein de la tourbe granulaire. D'abord, le temps de latence de 7 jours observé en microcosmes lors de la minéralisation du toluène avec de la tourbe neuve avait complètement disparu après 8 semaines de biofiltration, montrant une acclimatation des populations bactériennes au sein de la tourbe granulaire (Alexander, 1994; Millette *et al.*, 1995). De plus, les taux maximums de minéralisation, observés lors de la dégradation du toluène en microcosmes, ont augmenté avec l'âge de la tourbe (entre 8 et 14 semaines, ils sont passés de 0,3 à 0,47 mg/L.j, et ce, sans nutriments ajoutés). Ces résultats suggèrent qu'avec le temps, des performances de traitement de plus en plus intéressantes seraient obtenues.

Ensuite, il a été montré que les micro-organismes se trouvant dans la tourbe granulaire étaient capables, après 14 semaines de biofiltration, d'effectuer la minéralisation de tous les composés BTEX, sans temps de latence et avec des taux maximums et des pourcentages finaux de minéralisation comparables (0,4 à 0,5 mg/L.j et $70 \pm 10\%$ respectivement). Ces essais ont été effectués dans de l'eau souterraine réellement contaminée et contenant donc l'ensemble des composés BTEX et d'autres hydrocarbures pétroliers. Bien que la disparition d'un seul composé ait été suivie dans chacun des microcosmes dans le temps, ce résultat laisse supposer que la présence de d'autres composés biodégradables n'influence pas la minéralisation de chacun des BTEX. D'un point de vue de traitement, il s'agit d'une observation très intéressante puisqu'elle pourrait signifier que tous les composés BTEX seraient dégradés ensembles et au même taux. Des essais supplémentaires devraient cependant être effectués afin de confirmer cette hypothèse.

5.3.2 Support microbien

Un des aspects intéressants soulignés lors de la réalisation des essais en microcosmes est que la présence de tourbe granulaire est essentielle à la biodégradation des BTEX. En effet, sans le support fourni par la tourbe, les micro-organismes de l'eau souterraine sont incapables d'effectuer la minéralisation du toluène (7 % de minéralisation est obtenu après 35 jours d'essai). Cette observation est confirmée par Sturman *et al.* (1995), qui mentionnent qu'en considérant seulement la microflore en suspension, une sous-estimation du potentiel de biodégradation est effectuée. De surcroît, une étude récente réalisée par Otte *et al.* (1999) a montré que la présence d'un support, tel le sol, a une influence importante sur la minéralisation du PCP. Selon les auteurs, ce type de support joue trois rôles : il diminue la toxicité du contaminant dans le milieu, en diminuant sa concentration apparente par adsorption; il présente un support pour colonisation de la biomasse, et il sert d'apport en nutriments.

Les essais de minéralisation du *p*-xylène en microcosmes ont aussi permis de comparer l'activité biologique des diverses populations microbiennes au sein des biofiltres (section 4.3.3 : « Apport des diverses populations bactériennes sur le traitement »). À partir de ces essais, certaines tendances ont été constatées :

- 1) les micro-organismes de l'eau souterraine sont déjà adaptés aux BTEX, car ils effectuent la minéralisation du *p*-xylène sans temps de latence et à un taux maximum de 0.39 mg/L.j. L'absence de temps d'acclimatation signifie généralement que la biomasse en place est adaptée et en nombre suffisant (Alexander, 1994; Millette *et al.*, 1995);
- 2) dans les mêmes conditions, les micro-organismes de la tourbe granulaire neuve ont besoin d'une période d'acclimatation (temps de latence de 17 jours), mais sont ensuite capables de minéraliser le contaminant;

- 3) la flore microbienne contenue dans la tourbe après 8 semaine dégrade le *p*-xylène sans temps de latence et à un taux supérieur à celui obtenu avec l'eau souterraine seule (0,47 mg/L.j par rapport à 0,39 mg/L.j).

Ainsi, même si au départ les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire neuve sont moins bien adaptés aux BTEX que ceux de l'eau souterraine contaminée, la tourbe représente une surface d'attache nécessaire pour qu'un traitement puisse avoir lieu. Après un certain temps (≤ 8 semaines), la flore microbienne contenue dans la tourbe granulaire des biofiltres est donc constituée des micro-organismes provenant de l'eau souterraine et de micro-organismes indigènes adaptés aux contaminants. De plus, du fait que les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire ont montré des temps d'acclimatation assez court en microcosmes (7 jours pour le toluène et 17 jours pour le *p*-xylène), l'importante concentration cellulaire présente dans le milieu filtrant (10^7 cell./g sec) peut s'avérer extrêmement intéressant lors du traitement d'une eau ne contenant pas ou peu de biomasse.

5.3.3 Apport en nutriments

L'analyse chimique de la tourbe granulaire (Tableau 4.5) a permis de mettre en lumière l'absence d'ortho-phosphate dans le milieu filtrant et la disparition rapide (en moins de deux semaines) de l'azote sous forme de nitrite et de nitrate. Cet aspect n'avait pas été noté lors des recherches effectuées par Forget (1997), car cette dernière employait de l'eau souterraine synthétique contenant des nutriments tels le phosphate et le nitrate.

L'absence de ces nutriments en quantités mesurables a influencé les taux et les pourcentages finaux de minéralisation lors des essais en microcosmes, i.e. en milieu fermé (voir paragraphe 4.3.1.3 : « Présence du tampon phosphate »). Cependant, il semble qu'avec la circulation constante de l'eau souterraine lors des essais de terrain,

des traces de nutriments sont suffisantes à la synthèse des constituants cellulaires. En effet, la croissance excessive de biomasse dans le bassin de rétention, dans les conduites et sur la tourbe granulaire dans les biofiltres, indique que les populations bactériennes ne sont pas trop affectées. D'ailleurs, les concentrations moyennes en phosphore et en azote dans les eaux souterraines québécoises sont de 0,022 et 0,644 mg/L respectivement (Tableau 2.1; Simard et Des Rosiers, 1980). Comme la limite de détection associée à la méthode d'analyse des anions employée par le laboratoire Philip (« Détermination des anions par chromatographie ionique »; sous-section 3.3.5) est de 0,2 mg/L, il est possible que des traces de phosphore et d'azote aient servi à la croissance bactérienne.

Par ailleurs, comme la présence d'azote et de phosphore n'a pas été réellement mesurée, il est aussi possible que l'absence de dégradation observée après la troisième semaine d'opération des biofiltres (Figure 4.5) soit liée à un manque de nutriments en plus de la difficulté à assurer suffisamment d'oxygène dissous.

5.3.4 Détérioration des propriétés hydrodynamiques

Initialement, les deux configurations de biofiltres alimentés à 1,8 L/min (soit 10 m³/m².j) présentaient des DTS de type piston avec des volumes morts de 34 à 41 % dus aux propriétés intrinsèques de la tourbe granulaire, particulièrement sa porosité élevée de 90,2 % (Van Swaaij *et al.*, 1969). Cependant, aucun problème hydrodynamique important n'était présent et avec des temps de résidence de 42 et 48 minutes, il a été décidé de poursuivre les essais sur le terrain.

Avec le temps, le comportement hydrodynamique des biofiltres s'est beaucoup détérioré. Dans les biofiltres en percolation, une augmentation importante des volumes morts (de 41 à 68 %) et des chemins préférentiels (apparition de pics multiples; Levenspiel, 1972) a été constatée. Ces changements s'expliquent en partie par la

modification de la structure de la tourbe granulaire (effritement) et par l'augmentation de la proportion de liquide statique (de 47 à 66 %) notées lors des essais hydrostatiques. De plus, les problèmes de distribution du liquide à la surface des biofiltres en percolation n'est pas étrangère à la formation de chemins préférentiels. En effet, les trous des distributeurs étant souvent colmatés par des dépôts ferriques et de la biomasse, seuls quelques points d'alimentation étaient fonctionnels, toujours aux mêmes endroits.

Du côté des biofiltres saturés, deux comportements distincts ont été observés. Dans un des deux duplicatas, une augmentation importante du mélange a été soulignée (étalement de la courbe de DTS et estimation du volume de réacteur en écoulement mélangé de 71 %), alors que dans l'autre, c'est une recirculation du liquide au sein du milieu filtrant qui prédominait (courbe de DTS en vagues). Dans les deux cas, les problèmes hydrodynamiques constatés pourraient être associés à la présence des plaques perforées sur le dessus des milieux filtrants. En effet, le nombre de trous restreints sur ces plaques faisait en sorte que le liquide, une fois à la surface de la tourbe granulaire, devait modifier sa trajectoire pour trouver une issue. Cela étant, un mélange entre les éléments de fluides a été favorisé et des courants de recirculation ont pu être induits.

Parmi la littérature consultée, aucune recherche n'a porté sur l'étude hydrodynamique de réacteurs pilotes contenant des milieux semblables à la tourbe granulaire. Cependant, la comparaison des résultats obtenus avec ceux présentés par Forget (1997) permet de commenter sur la mise à l'échelle d'un biofiltre à base de tourbe granulaire. En effet, l'étude de Forget (1997), réalisée sur une colonne de 0,5 L opérée à courant ascendant, avait montré que l'écoulement de l'eau dans le milieu filtrant était de type piston, avec dispersion axiale intermédiaire, sans zone morte ni chemins préférentiels. Au cours de cette étude, le taux de charge hydraulique (TCH) imposé à la colonne de

tourbe variaient entre 10 et 1 000 cm³/cm².min (débits de 1 à 100 mL/min. dans une colonne de 39 mm de diamètre). En comparaison, les biofiltres pilotes de 200 L utilisés dans la présente étude étaient alimentés à des TCH de 0,7 cm³/cm².min (débit de 1.8 L/min sur une surface de 0,264 m²). Il apparaît donc que la diminution du TCH et l'augmentation du volume ont induit des difficultés hydrodynamiques. Cette observation est confirmée par Zuiderweg *et al.* (1993), qui mentionnent que plus le diamètre d'une colonne est important, plus elle est sensible à une mauvaise distribution.

Mais d'autres différences importantes entre les deux échelles doivent être notées. D'abord, les effets de parois, beaucoup plus importants dans la colonne de 0,5 L. ont possiblement réduit la compaction du milieu filtrant à petite échelle. De plus, comme le rapport hauteur/diamètre des biofiltres pilotes était très près de l'unité (60 cm/58 cm), par rapport à 0,09 (3,9 cm/44 cm) dans la colonne employée par Forget (1997), il se peut que l'importance des effets de bout dans le milieu filtrant rendent l'obtention d'un écoulement piston très difficile. Enfin, le colmatage des cubes de tourbe par l'oxyde ferrique et la biomasse provenant du bassin aéré ont dû modifier l'écoulement au sein du milieu filtrant, favorisant la formation de chemins préférentiels et de zones mortes.

5.4 IMPLICATIONS SUR LA TECHNOLOGIE

Pour déterminer l'influence de toutes ces observations sur l'application de la biofiltration à base de tourbe granulaire comme méthode de traitement de l'eau souterraine contaminée par les BTEX, un retour sur les critères de conception (Tableau 3.3) est proposé.

D'après les critères fixés, le milieu filtrant devait avoir une importante conductivité hydraulique, ne pas se compacter et posséder des propriétés physiques stables sur de

longues périodes. Suite aux essais réalisés, il est possible d'affirmer que la tourbe granulaire a une conductivité hydraulique extrêmement élevée et que sa porosité reste constante dans le temps. Cependant, une certaine compaction a été observée suite à l'effritement des cubes de tourbe. De ce fait, la fraction volumique d'eau dynamique a beaucoup diminué dans le temps au profit du liquide statique. Ainsi, un nouveau biofiltre devrait tenir compte de cette tendance qu'a la tourbe à s'écraser sous son poids.

Ensuite, les critères hydrodynamiques exigeaient que l'écoulement au sein des biofiltres soit de type piston et qu'il soit exempt de zones mortes et de chemins préférentiels. Au départ, un écoulement s'approchant du comportement piston a été observé. Cependant, la compaction du milieu, la mauvaise distribution en percolation et la présence de plaques perforées en écoulement saturé ascendant ont fait en sorte que des problèmes hydrodynamiques se sont développés. En percolation, l'augmentation du volume mort et la formation de chemins préférentiels ont été très marquées, alors qu'en milieu saturé, c'est principalement le mélange sous la plaque perforée qui s'est intensifié. Pour maintenir de bonnes propriétés hydrodynamiques dans le temps, des modifications devraient être apportées aux configurations des biofiltres. Encore une fois, il faudrait empêcher la tourbe granulaire de se compacter. En plus, une distribution adéquate de l'eau dans le biofiltre en percolation aiderait énormément, et l'enlèvement de la plaque perforée dans l'unité saturée permettrait de diminuer le mélange en facilitant la sortie du liquide.

Enfin, les critères se rapportant au traitement de l'eau souterraine demandaient à ce que les biofiltres assurent une importante activité de minéralisation des BTEX, qu'ils fonctionnent à 10°C et à de faibles concentrations en oxygène dissous, et enfin qu'ils permettent la prévention des pertes de COV à l'atmosphère. Les résultats obtenus lors des essais de biofiltration en continu n'ont pas permis de vérifier ces critères, à cause

des problèmes techniques rencontrés. Cependant, lorsque de l'OD était présent dans l'eau souterraine, une diminution des concentrations de BTEX était notée entre l'entrée et la sortie des biofiltres. De plus, le suivi microbiologique en microcosmes a montré qu'après quelques semaines dans les biofiltres, les micro-organismes de la tourbe granulaire étaient en mesure de minéraliser tous les BTEX à 10 °C, en conditions aérobies. La mesure de l'oxygène dissous dans l'eau des microcosmes n'a pu être effectuée au cours des essais, vu la taille des bouteilles sérologiques rendant impossible d'y entrer une sonde à OD, et la sensibilité des mesures d'OD interdisant de prendre la mesure dans un autre récipient. Par ailleurs, aucune aération autre que celle provenant de l'espace de tête n'a été effectuée, ce qui permet de supposer que l'oxygénation était faible. Pour ce qui est du traitement des COV, il n'a pas eu lieu à cause de l'absence d'oxygène gazeux dans l'espace de tête des biofiltres pilotes. Ainsi, la majorité des critères de traitement semblent être satisfaits. Toutefois, plus de résultats provenant de l'opération en continu seraient nécessaires pour qu'une conclusion puisse être portée quant à l'efficacité du traitement par un tel système de biofiltration.

À partir de toutes ces observations, il est possible de formuler des propositions quant aux modifications qui devraient être effectuées à la configuration des biofiltres pour que tous les critères fixés soient rencontrés. À cette fin, des recommandations ont été avancées et sont présentées au chapitre suivant.

CHAPITRE 6

CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

6.1 CONCLUSIONS GÉNÉRALES

La présente étude a porté sur le développement et le suivi de biofiltres pilotes servant au traitement de l'eau souterraine contaminée par les BTEX. En premier lieu, des essais réalisés en laboratoire ont permis de déterminer que la tourbe granulaire possédait les caractéristiques physiques et microbiologiques d'un bon milieu filtrant. Ensuite, deux configurations de biofiltres pilotes ont été conçues : un biofiltre en percolation et l'autre saturé à courant ascendant. Chacune des configurations étant étudiée en duplicata, quatre unités pilotes ont été construites et installées sur le site d'une industrie pétrolière à Trois-Rivières.

Pendant 17 semaines, soit de juillet à décembre 1998, des échantillonnages et mesures ont été effectués régulièrement dans l'eau à l'entrée et à la sortie des biofiltres. À cause de divers problèmes techniques et de conditions opératoires difficiles, les essais de biofiltration en continu sur le terrain n'ont montré qu'une courte période de biodégradation, lorsque de l'oxygène dissous était présent dans l'eau à traiter. Il n'a donc pas été possible d'établir une cinétique de biodégradation ou d'évaluer si le traitement par cette technologie était efficace ou non.

Cependant, le suivi de l'activité microbiologique en microcosmes a montré qu'une acclimatation des micro-organismes contenus dans la tourbe granulaire s'effectuait dans le temps, accompagnée par une augmentation des taux de minéralisation. De plus, tous les BTEX ont été dégradés de manière similaire en présence d'eau souterraine

contaminée à 10 °C et en conditions aérobies. Il s'agit de constatations intéressantes pour un système de biofiltration, car si elles s'appliquent à l'opération en continu, elles signifient qu'en présence de conditions opératoires favorables, la capacité de traitement augmenterait dans le temps et que tous les composés BTEX seraient dégradés de la même façon.

Il a aussi été constaté que l'ajout de nutriments, tel le phosphore, stimule la biodégradation du toluène en microcosmes. En effet, la tourbe granulaire ne contient pas d'ortho-phosphate et est rapidement lavée du nitrite-nitrate qu'elle contenait au départ. Néanmoins, les essais effectués en continu sur le terrain ont montré que, malgré l'absence d'azote et de phosphore en quantités détectables dans la tourbe et dans l'eau souterraine, une croissance bactérienne importante avait lieu partout dans le système, principalement stimulée par l'aération. Ainsi, des traces de nutriments dans l'eau souterraine circulant en continu ont été suffisantes pour assurer la croissance microbienne.

Au départ, l'eau souterraine contaminée contenait plus de micro-organismes adaptés aux BTEX que la tourbe granulaire neuve. Cependant, il a été montré que la présence de tourbe en tant que support microbien est essentielle à la dégradation des contaminants. De plus, avec le temps, il s'est produit une acclimatation de la flore indigène de la tourbe. Ainsi, après quelques semaines de biofiltration, la microflore contenue dans le milieu filtrant était composée à la fois de micro-organismes provenant de l'eau contaminée et de micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire, acclimatés aux conditions prévalant dans le biofiltre. Enfin, du fait que les micro-organismes de la tourbe granulaire ont montré des temps d'acclimatation assez court en microcosmes, l'importante concentration cellulaire présente dans le milieu filtrant peut s'avérer extrêmement intéressante lors du traitement d'une eau ne contenant pas ou peu de biomasse.

Le comportement hydrodynamique de l'eau dans les réacteurs a aussi été étudié à l'aide d'essais de traçage réalisés au départ et après 19 semaines de biofiltration. Initialement, les deux configurations de biofiltres présentaient des écoulements intermédiaires se rapprochant de l'écoulement piston, avec un peu de volumes morts et de mélange dus à la grande porosité de la tourbe. Après 19 semaines, la fraction de liquide statique dans le milieu filtrant avait significativement augmenté et le comportement hydrodynamique des biofiltres s'en est trouvé détérioré. En percolation, les volumes morts ont pris de l'importance et les problèmes de distribution dus au colmatage des distributeurs ont favorisé l'apparition de chemins préférentiels. Dans les biofiltres saturés, les plaques perforées servant à empêcher la tourbe granulaire de bloquer les conduites ont eu pour effet d'accentuer le mélange et de former de la recirculation dans le milieu filtrant.

Ainsi, malgré le fait que les essais sur le terrain n'ont pas permis de déterminer une cinétique de traitement de l'eau souterraine, ils ont tout de même permis d'étudier la modification des caractéristiques microbiologique et hydrodynamique des biofiltres dans le temps. Il en ressort que les propriétés microbiologiques de la tourbe granulaire restent extrêmement intéressantes avec le temps et que les problèmes hydrodynamiques rencontrés peuvent être réglés en modifiant la configuration des biofiltres. Pour cela, des recommandations sont effectuées.

6.2 RECOMMANDATIONS

Suite aux essais réalisés dans le cadre de la présente étude, il devait être possible de déterminer laquelle des configurations testées était préférable pour la biofiltration de l'eau souterraine. Mais la comparaison des performances hydrodynamiques et des capacités de traitement des deux types de biofiltres permet difficilement de choisir. En effet, dans les deux cas, l'écoulement après 19 semaines de biofiltration présentait des

problèmes hydrodynamiques et dans les deux cas, une très courte période d'enlèvement des BTEX a été observée sur le terrain.

Par ailleurs, l'effritement et la compaction de la tourbe granulaire observés dans les biofiltres et la difficulté à assurer des concentrations en oxygène dissous suffisantes dans l'eau à traiter permettent d'effectuer des propositions quant à la conception de nouvelles unités.

Tout d'abord, un système d'aération doit être prévu à l'intérieur de chaque biofiltre. Ce type d'alimentation permettrait d'empêcher la formation de biomasse dans la tuyauterie en amont des unités de biofiltration et d'assurer suffisamment d'oxygène gazeux pour dégrader les COV. De plus, l'alimentation en eau et en air devrait se faire à co-courant pour minimiser les pertes d'hydrocarbures aromatiques par volatilisation. Il est à noter qu'à la fin des essais de terrain présenté dans ce mémoire, il fut décidé d'introduire l'air à même les biofiltres, dans le bas de chacune des unités en percolation. Des expériences avec ce type d'aération sont actuellement en cours sur le terrain et les résultats obtenus jusqu'à maintenant sont probants. En effet, les concentrations en oxygène dissous dans l'eau des biofiltres est maintenue autour de 11 mg/L et de bons taux de dégradation semblent y être associés.

En plus des changements dans le type d'aération, le milieu filtrant doit être divisé en plusieurs sections pour ne pas que les couches inférieures de tourbe granulaire aient à supporter le poids des couches supérieures.

À partir de ces propositions, un nouveau concept de biofiltre a été envisagé. Il s'agit d'un biofiltre à « plateaux », dont un schéma sommaire est présenté à la Figure 6.1.

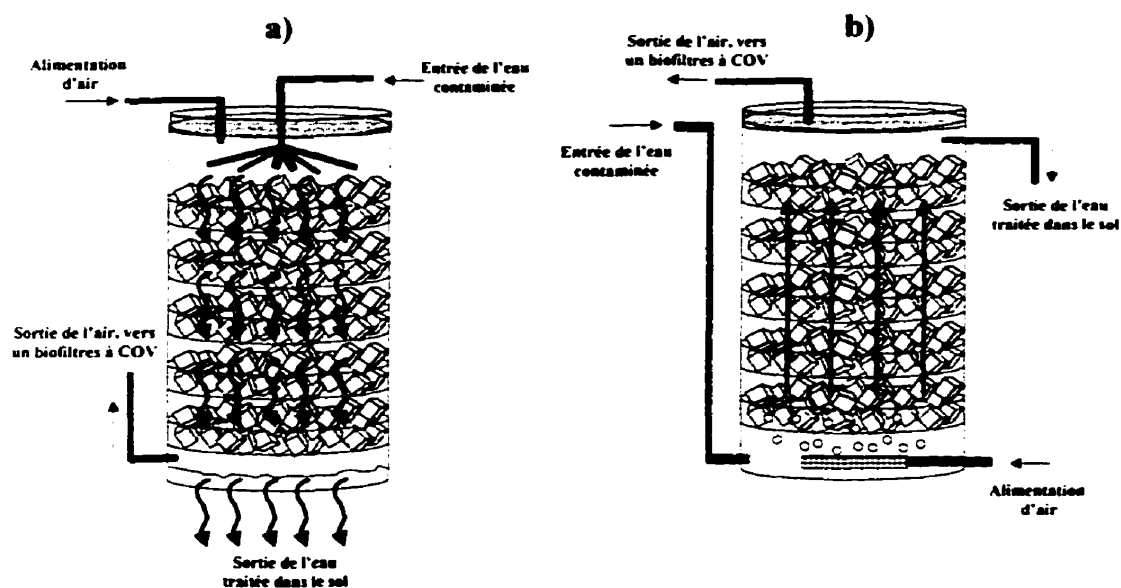


Figure 6.1 : Schéma de biofiltres à « plateaux », a) écoulement en percolation; b) écoulement saturé ascendant.

Un tel biofiltre permettrait de résoudre la majorité des problèmes rencontrés lors de l'opération des unités pilotes sur le terrain. En effet, la division du milieu filtrant en paliers (constitués de plaques perforées) permettrait :

- ✓ d'empêcher la compaction du milieu filtrant
- ✓ de faciliter l'aération de l'eau
- ✓ de permettre une redistribution de l'écoulement entre chaque palier
- ✓ d'augmenter le temps de séjour du liquide dans les biofiltres.

Pour ce qui est de l'utilisation de la tourbe granulaire comme milieu filtrant dans une tranchée d'infiltration (tel que décrit à la section 1.3 : « Concept visé »), l'alimentation de l'eau en mode percolation semble plus simple à gérer. Aussi, l'application des biofiltres à plateaux a été imaginée dans le cas d'une galerie d'infiltration et un schéma est présenté à la Figure 6.2.

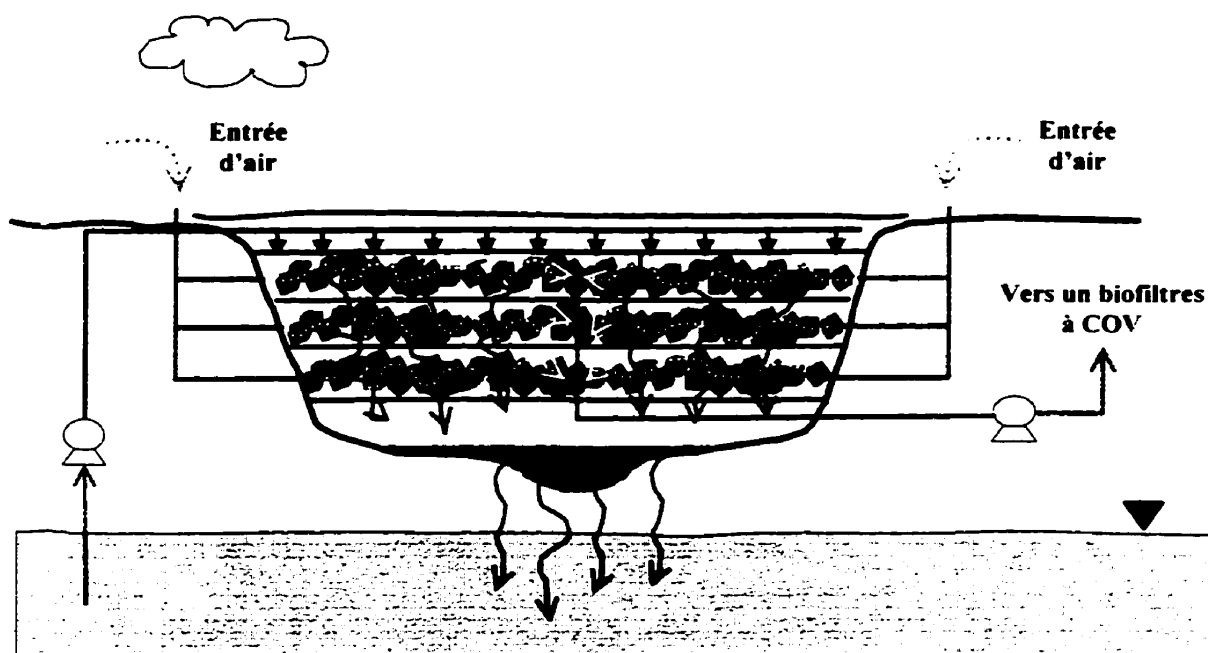


Figure 6.2 : Schéma d'une galerie d'infiltration à « plateaux ».

Dans ce système, l'eau est alimentée par le haut et « percole » à travers le milieu filtrant jusqu'au bas. Une alimentation d'air est assurée par des ouvertures à chaque palier et une pompe tire l'air vers le bas de la galerie d'infiltration et l'envoie vers un biofiltre à COV.

Avant d'implanter un tel système de traitement, il serait important de tester les biofiltres à plateaux décrits précédemment. De plus, certaines étapes devraient être respectées :

- 1) Contrôle des conditions physiques. Avant d'introduire l'aspect biologique de traitement, s'assurer que la mécanique des biofiltres est correcte, que la distribution et l'écoulement de l'eau sont tels que désirés.
- 2) Contrôle des conditions chimiques. À l'avenir, l'eau souterraine à traiter ne devrait pas être puisée au cœur du panache de contamination pour éviter que des conditions

anoxies y prévalent. De plus, une analyse du contenu de l'eau souterraine en fer devrait être effectuée. Dans le cas où des concentrations de 2 à 10 mg/L y seraient mesurées, un pré-traitement de l'eau doit être prévu afin d'empêcher la formation d'oxydes ferriques dans les biofiltres suite à l'aération (Driscoll, 1986). À titre d'exemple, un système de traitement suivant la méthode Vyredox™ (Driscoll, 1986) pourrait être installé à proximité des puits d'alimentation des biofiltres de manière à oxyder le fer à même l'aquifère. Cependant, ce système emploie l'aération de l'eau souterraine comme méthode d'enlèvement du fer, ce qui peut avoir comme effet de volatiliser les BTEX et divers composés volatils contenus dans l'eau souterraine à traiter. Rappelons que le transfert des contaminants en phase gazeuse n'est pas désiré puisqu'un traitement par biofiltration de l'eau est souhaité. Aussi, dans le cas où d'importantes concentrations de fer seraient à oxyder, il est possible que la biofiltration de l'eau souterraine sur tourbe granulaire ne soit pas la technologie à préconiser.

- 3) contrôle des conditions biologiques. Pour assurer un enlèvement substantiel des contaminants par biofiltration, des conditions optimales de croissances bactériennes devraient être assurées. Comme la tourbe granulaire est rapidement lavée de ses nutriments, il serait important de prévoir l'ajout d'azote et de phosphore dans l'eau à traiter ou par composés à relâchement lent.

RÉFÉRENCES

- ABUMAIZAR, R.J., KOCHER, W. et SMITH, E.H. (1998). Biofiltration of BTEX Contaminated Air Streams Using Compost-Activated Carbon Filter Media. Journal of Hazardous Materials, **60**, 111-126.
- AL-BASHIR, B. HAWARI, J. SAMSON, R. et LEDUC, R. (1994). Behavior of Nitrogen-Substitued Naphthalenes in Flooded Soil - Part II. Effect of Bioavailability on Biodegradation Kinetics. Water Research, **28** (8), 1827-1833.
- ALEXANDER, M. (1994). Biodegradation and Bioremediation. Academia Press, Inc., San Diego, CA.
- ALLEN-KING, R.M., BARKER, J.F., GILLHAM, R.W. et JENSEN, B.K. (1994). Substrate- and Nutrient-Limited Toluene Biotransformation in Sandy Soil. Environ. Toxicol. Chem., **13** (5), 693-705.
- ALVAREZ, P.J.J. et VOGEL, T.M. (1991). Substrate Interactions of Benzene, Toluene, and *para*-Xylene during Microbial Degradation by Pure Cultures and Mixed Culture Aquifer Slurries. Applied and Environmental Microbiology, **57** (10), 2981-2985.
- ALVAREZ, P.J.J., ANID, P.J. et VOGEL, T.M. (1991). Kinetics of Aerobic Biodegradation of Benzene and Toluene in Sandy Aquifer Material. Biodegradation, **2**, 43-51.
- ANID, P.J., ALVAREZ, P.J.J. et VOGEL, T.M. (1993). Biodegradation of Monoaromatic Hydrocarbons in Aquifer Columns Amended with Hydrogen Peroxide and Nitrate. Water Research, **27** (4), 685-691.
- ARMSTRONG, A.Q., HODSON, R.E., HWANG, H.M. et LEWIS, D.L. (1991). Environmental Factors Affecting Toluene Degradation in Ground Water at a Hazardous Waste Site. Environ. Toxic. Chem., **10**, 147-158.
- ARVIN, E., JENSEN, B.K. et GUNDERSEN, A.T. (1989). Substrate Interactions during Aerobic Biodegradation of Benzene. Applied and Environmental Microbiology, **55** (12), 3221-3225.

BAGGI, G., BARBIERI, P., GALLI, E. et TOLLARI, S. (1987). Isolation of a *Pseudomonas stutzeri* Strain that Degrades *o*-Xylene. Applied Environmental Microbiology, 53 2129-2132.

BAKER, K.H. et HERSON, D.S. (1994). Bioremediation. Mc Graw-Hill. New York. NY.

BARKER, J.F., PATRICK, G.C. et MAJOR, D. (1987). Natural Attenuation of Aromatic Hydrocarbons in a Shallow Sand Aquifer. Ground Water Monitoring Review, (Winter), 64-71.

BARKER, J.F., WEBER, J., FYFE, J.S., DEVLIN, J.F., MACKAY, D.M. et CHERRY, J.A. (1993). Efficient Addition Technology for *In Situ* Bioremediation. Third Annual Symposium on Groundwater and Soil Remediation, Quebec, Canada, 285-296.

BEDIENT, P.B., RIFAI, H.S. et NEWELL, C.J. (1994). Ground Water Contamination: Transport and Remediation. PTR Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, NJ.

BÉLANGER, M.-C. (1994). Hydrodynamique d'un biofiltre a tourbe opéré en mode de percolation avec aération forcée. Mémoire de maitrise, École Polytechnique de Montréal, Canada.

BENEFIELD, L.D. ET RANDALL, C.W. (1980). Biological Process Design for Wastewater Treatment. PRT Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, N.J.

BIANCHI-MOSQUERA, G.C., ALLEN-KING, R.M. et MCKAY, D.M. (1994). Enhanced Degradation of Dissolved Benzene and Toluene Using a Solid Oxygen-Releasing Compound. Ground Water Monitoring Review, (Winter), 120-128.

BIELEFELDT, A.R. et STENSEL, H.D. (1998). Modeling Competitive Inhibition Effects During Biodegradation of BTEX Mixtures. Water Research, 33 (3), 707-714.

BONILLA, J.A. (1993). Don't Neglect Liquid Distributors. Chemical Engineering Progress, 89 (March), 47-61.

BORDEN, R.C., GOIN, R.T. et KAO, C.-M. (1997). Control of BTEX Migration Using a Biologically Enhanced Permeable Barrier. Ground Water Monitoring Review, (Winter), 70-80.

BOULDING, J.R. (1995). *Practical Handbook of Soil, Vadose Zone, and Ground-Water Contamination. Assessment, Prevention and Remediation.* Lewis Publishers, Boca Raton, FL.

BROWN, R. (1994). Treatment of Petroleum Hydrocarbons in Ground Water by Air Sparging. *Handbook of Bioremediation*, Matthews, J.E. ed., Lewis Publishers, Boca Raton, FL., 61-85.

BROWN, R.A. et NORRIS, R.D. (1993). The Evolution of a Technology: Hydrogen Peroxide in *In Situ* Bioremediation, *Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium*, vol. 2, San Diego, CA, 148-162.

CARTWRIGHT, G.C. (1991). Limitations of Pump and Treat Technology. *Pollution Engineering*, (November), 64-68.

CHAPMAN, S.W., BYERLEY, B.T., SMYTH, D.J., WILSON, R.D. et MACKAY, D.M. (1997a). Semi-Passive Oxygen Release Barrier for Enhancement of Intrinsic Bioremediation, *Fourth International In Situ and On-Site Bioremediation Symposium*, vol. 4, New Orleans, LA, 209-214.

CHAPMAN, S.W., BYERLEY, B.T., SMYTH, D.J.A. et MCKAY, D.M. (1997b). A Pilot Test of Passive Oxygen Release for Enhancement of *In Situ* Bioremediation of BTEX-Contaminated Ground Water. *Ground Water Monitoring Review*, (Spring), 93-105.

COHEN, A.D., ROLLINS, M.S., ZUNIC, W.M. et DURIG, J.R. (1991). Effect of Chemical and Physical Differences in Peats on their Ability to Extract Hydrocarbons from Water. *Water Research*, 25 (9), 1047-1060.

COOKSON, J.T.J. (1995). *Bioremediation Engineering: Design and Application.* McGraw-Hill, New York, NY.

CORSEUIL, H.X. et WEBER, W.J. (1994). Potential Biomass Limitations on Rates of Degradation of Monoaromatic Hydrocarbons by Indigenous Microbes in Subsurface Soils. *Water Research*, 28, 1415-1423.

CORSI, R.L. (1995). Biofiltration of BTEX: Media Substrate, and Loading Effects. *Environmental Progress*, 14 (3), 151-158.

COUPAL, B. (1985). La tourbe: un agent dépolluant. GEOS., 4, 10-13.

COUPAL, B. et LALANCETTE, J-M. (1976). The Treatment of Waste Waters with Peat Moss. Water Research, 10, 1071-1076.

CRANE (1988). Flow of Fluids Through Valves, Fittings, and Pipe, Metric Ed., Crane Ltd. Nacton Road, Ipswich, Suffolk.

C.U.M. (1986). Règlement relatif à l'assainissement de l'air et remplaçant les règlements 44 et 44-1 de la Communauté. (Règlement no 90 de la CUM, modifié par les règlements nos 90-1, 90-2 et 90-3).

DAIGNEAULT, R. et PAQUET, M. (1994). L'environnement au Québec. Les publication CCH/FM ltée., Farnham, QC.

DE SMET, M. (1995). Dossier décontamination des sols, Envirotech, 2 (5), 12-24.

DEVLIN, J.F. et BARKER, J.F. (1994). A Semipassive Nutrient Injection Scheme for Enhanced *In Situ* Bioremediation. Ground Water, 32 (3), 374-380.

DIBBLE, J.T. et BARTHA, R. (1979). Effect of Environmental Parameters on the Biodegradation of Oil Sludge. Applied Environmental Microbiology, 37 (4), 729-739.

DRISCOLL, F. G. (1986). Groundwater and Wells, 2nd Ed., Johnson Filtration Systems Inc., St-Paul, Minnesota.

ENVIRONNEMENT CANADA (1992). Loi canadienne sur la protection de l'environnement, liste des substances d'intérêt prioritaire, rapport d'évaluation n°4 : toluène, Gouvernement du Canada, Ottawa, Canada.

ENVIRONNEMENT CANADA (1993a). Loi canadienne sur la protection de l'environnement, liste des substances d'intérêt prioritaire, rapport d'évaluation : benzène, Gouvernement du Canada, Ottawa, Canada.

ENVIRONNEMENT CANADA (1993b). Loi canadienne sur la protection de l'environnement, liste des substances d'intérêt prioritaire, rapport d'évaluation : xylènes, Gouvernement du Canada, Ottawa, Canada.

EPA (1984). Review of In-Place Treatment Techniques for Contaminated Surface Soils -Volume 1: Technical Evaluation. United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development. Cincinnati, OH. EPA/540/2-84-003a.

EPA (1996). Pump-and-Treat Ground-Water Remediation: A Guide for Decision Makers and Practitioners, United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development. Cincinnati, OH.

EPA, (1990). Handbook, Ground Water, Volume 1: Ground Water and Contamination. United States Environmental Protection Agency, Office of Research and Development. Washington, DC.

FOGLER, H.S. (1992). Elements of Chemical Reaction Engineering, 2nd Edition. PTR Prentice Hall inc., Englewood Cliffs, NJ.

FORGET, D. (1997). Caractérisation d'un nouveau milieu filtrant pour la biofiltration in situ des BTEX dans les eaux souterraines. Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal, Canada.

FRUZER, I.A. et MICHELL, R.W. (1970). Liquid-Phase Dispersion in Packed Beds with Two-Phase Flow. AIChE Journal, 16 (3), 380-385.

GIBSON, D.T. et SUBRAMANIAN, V. (1984). Microbial Degradation of Aromatic Hydrocarbons. Microbial Degradation of Organic Compounds, Gibson, D.T. éd., Marcel Dekker publisher, 181-252.

GORELICK, S.M., FREEZE, R.A., DONOHUE, D. et KELLY, J.F. (1993). Groundwater Contamination, Optimal Capture and Containment. Lewis Publishers, Boca Raton, FL.

GOUVERNEMENT DU CANADA (1985). Loi canadienne sur la protection de l'environnement, L.R.C. 1985, c. 16 Environnement Canada. Ottawa, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC. Loi sur la qualité de l'environnement. Ministère de l'environnement et de la faune. L.R.Q., c. Q-2. Ste-Foy, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC (1991). Règlement sur les produits pétroliers, Ministère des Ressources Naturelles. Décret 753-91, G.O. 26 juin 1991; après refonte: R.R.Q., c. U-1.1, r.1. Ste-Foy, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC (1996a). La problématique des eaux souterraines au Québec. Ministère de l'Environnement et de la Faune. Ste-Foy, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC (1996b). Projet de politique de protection et de conservation des eaux souterraines. Ministère de l'environnement et de la faune. Ste-Foy, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC (1998a). La gestion de l'eau au Québec. document de consultation publique. Ministère de l'environnement et de la faune. Ste-Foy, Canada.

GOUVERNEMENT DU QUÉBEC (1998b). Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés. Ministère de l'environnement et de la faune. Québec, Canada.

HASBACH, A. (1993). Moving Beyond Pump-and-Treat. Pollution Engineering. (March), 36-39.

HOFFMAN, F. (1993). Ground-Water Remediation Using "Smart Pump and Treat". Ground Water, 31 (1), 98-106.

HYMAN, M. et BAGAASEN, L. (1997). Select a Site Cleanup Technology. Chemical Engineering Progress, 93 (8), 22-43.

JOHNSON, J.G. et ODENCRANTZ, J.E. (1997). Management of a Hydrocarbon Plume Using a Permeable ORC Barrie. Fourth International In Situ and On-Site Bioremediation Symposium, vol. 4, New Orleans, LA, 215-220.

KAO, C.-M. et BORDEN, R.C. (1993). Enhanced Aerobic Bioremediation of a Gasoline Contaminated Aquifer by Oxygen-Releasing Barriers. Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 2, San Diego, CA, 262-266.

LEAHY, J.G. et COLWELL, R.R. (1990). Microbial Degradation of Hydrocarbons in the Environment. Microbial Reviews, 54 (3), 305-315.

LEE, M.D., THOMAS, J.M., BORDEN, R.C., BEDIANT, P.B., WARD, C.H. et WILSON, J.T. (1988). Bioremediation of Aquifers Contaminated with Organic Compounds. Critical Reviews in Environmental Control, 18 (1), 29-89.

LEVENSPIEL, O. (1972). Nonideal Flow. Chemical Reaction Engineering, 2nd Edition, John Wiley & Sons, N-Y, 253-315.

LU, C.J. (1993). Effect of Hydrogen Peroxide on the *In Situ* Biodegradation of Organic Chemicals in a Simulated Groundwater System, Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 2, San Diego, CA. 140-147.

MACDONALD, J.A. et KAVANAUGH, M.C. (1994). Restoring Contaminated Groundwater An Achievable Goal ? Environmental Science and Technology, 28 (8), 362-368.

MARTINEAU, G., TÉTREAU, A., GAGNON, J., DESCHÊNES, L. et SAMSON, R. (1999). Development of a Biofiltration System for *In Situ* Remediation of BTEX-Impacted Groundwater, Fifth International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, San Diego, CA.

MARQUIS, S.J. (1995). Don't Give Up on Pump-and-Treat, Soil & Groundwater Cleanup. (Aug.-Sept.), 46-50.

MCKAY, D.M. et CHERRY, J.A. (1989). Groundwater Contamination : Pump-and-Treat Remediation. Environmental Science and Technology, 23 (6), 630-636.

MERCK INDEX (1996). Budavari, S., *et al.*, Merck Research Laboratories, division of Merck and Co. inc., Whitehouse Station, NJ.

MICHELL, R.W. et FURZER, I.A. (1972). Mixing in Trickle Flow Packed Bed. Chemical Engineering Journal, 4 (1), 53-63.

MILLETTE, D. BARKER, J.F., COMEAU, Y., BUTLER, B.J., FRIND, E.O., CLÉMENT, B. et SAMSON, R. (1995). Substrate Interaction during Aerobic Biodegradation of Creosote-Related Compounds: A Factorial Batch Experiment. Environmental Science and Technology, 29 (8), 1944-1952.

MONTGOMERY, J.H. et WELKOM, L.M. (1989). Groundwater Chemicals Desk Reference. Lewis Publishers, Chelsea, VT.

NGUYEN, H.D., SATO, C. et WU, J. (1997). Modeling Biofiltration of Gas Streams Containing TEX Components. Journal of Environmental Engineering, 123 (6), 615-621.

NORRIS, R.D. (1994). *In Situ* Bioremediation of Soils and Ground Water Contaminated with Petroleum Hydrocarbons. Handbook of Bioremediation. Matthews, J.E. ed., Lewis Publishers, Boca Raton, FL. 17-37.

NORRIS, R.D., DOWD, K. et MAUDLIN, C. (1993). The Use of Multiple Oxygen Sources and Nutrient Delivery Systems to Effect *In Situ* Bioremediation of Saturated and Unsaturated Soils, Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 2, San Diego, CA, 405-410.

NYER, E.K. (1993). One Small Voice for Pump-and-Treat. Practical Techniques for Groundwater and Soil Remediation, Nyer, E.K. éd., Lewis Publishers, Boca Raton, FL.

NYER, E.K. (1996). Limitation of Pump-and-Treat Remediation Methods. In Situ Treatment Technology, Nyer, E.K., et al. éds., Lewis Publishers, Boca Raton, FL. 1-36.

NYER, E.K., CROSSMAN, T.L. et BOETTCHER, G. (1996). *In Situ* Bioremediation. In Situ Treatment Technology, Nyer, E.K., et al. éds., Lewis Publishers, Boca Raton, FL. 61-100.

OH, Y.-S., SHAREEFDEEN, Z., BALTZIS, B.C. et BARTHA, R. (1994). Interaction Between Benzene, Toluene, and p-Xylene (BTX) During their Biodegradation. Biotechnology and Bioengineering, 44, 533-538.

OTTE, M-P., COMEAU, Y., SAMSON, R. et GREER, C.W. (1999). Enhancement of Pentachlorophenol Biodegradation Using Organic and Inorganic Support. Bioremediation Journal, 3, (1), 35-47.

PALMER, P.L. (1996). Reactive Walls. In Situ Treatment Technology, Nyer, E.K., et al. éds., Lewis Publishers, Boca Raton, FL. 271-288.

PORTIER, D.R.J. et CHITLA, S.R. (1996). Try Bio Down Under. Soil & Groundwater Cleanup, (May), 13-19.

RAEL, J., SHELTON, S., ASCE MEMBER et DAYAYE, R. (1995). Permeable Barriers to Remove Benzene: Candidate Media Evaluation. Journal of Environmental Engineering, (May), 411-415.

REDDY, K.R., KOSGI, S. et ZHOU, J. (1995). A Review of *In-Situ* Air Sparging for the Remediation of VOC-Contaminated Saturated Soils and Groundwater. Hazardous Waste & Hazardous Materials, 12 (2), 97-118.

REINHARD, M. (1994). *In Situ* Bioremediation Technologies for Petroleum-Derived Hydrocarbons Based on Alternate Electron Acceptors (Other than Molecular Oxygen). Handbook of Bioremediation, Matthews, J.E. éd., Lewis Publishers. Boca Raton, FL. 131-147.

RIFAI, H.S., BORDEN, R.C., WILSON, J.T. et WARD, C.H. (1995). Intrinsic Bioattenuation for Subsurface Restoration. Bioremediation Series, Hinchey, R.E. *et al.* éd., Batelle Press, OH. 3(1): 1-30.

RITTER, W.F. et SCARBOROUGH, R.W. (1995). A Review of Bioremediation of Contaminated Soils and Groundwater. Journal of Environmental Science and Health, 30 (2), 333-357.

SABERIYAN, A.G., WILSON, M.A., ROE, E.O., ANDRILENAS, J.S., ESLER, C.T., KISE, G.H. et REITH, P.E. (1993). Removal of Gasoline Volatile Organic Compounds via Air Biofiltration: A Technique for Treating Secondary Air Emissions from Vapor-Extraction and Air-Stripping Systems, Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 2, San Diego, CA. 1-11.

SATTERFIELD, C.N. (1975). Trickle-Bed Reactors. AIChE Journal, 21 (2), 209-228.

SHAREEFDEEN, Z. et BALTZIS, B.C. (1994). Biofiltration of Toluene Vapor Under Steady-State and Transient Conditions: Theory and Experimental Results. Chemical Engineering Science, 49 (24A), 4347-4360.

SHRAA, G., BETHE, B.M., NEERVEN, A.R.W.V., TWEEL, W.J.J.V.D., WENDE, E.V.D. et ZEHNDER, A.J.B. (1987). Degradation 1,2-Dimethylbenzene by *Corynebacterium* Strain C125. Antonie van Leeuwenhoek, 53, 159-170.

SIMARD, G. et DESROSIERS, R. (1980). Qualité des eaux souterraines du Québec, Gouvernement du Québec, Ministère de l'environnement, Service des eaux souterraines. Québec, Canada.

SIMS, J.L., SUFLITA, J.M. et RUSSELL, H.H. (1992). In-Situ Bioremediation of Contaminated Ground Water, EPA, Office of Research and Development. Washington, DC.

SMITH, M.R. (1990). The Biodegradation of Aromatic Hydrocarbons by Bacteria. Biodegradation, 1, 191-206.

STARR, R.C. et CHERRY, J.A. (1994). *In Situ* Remediation of Contaminated Ground Water: The Funnel-and-Gate System. Ground Water, 32 (3), 465-476.

STURMAN, P.J., STEWART, P.S., CUNNINGHAM, A.B., BOUWER, E.J. et WOLFRAM, J.H. (1995). Engineering Scale-Up of *In Situ* Bioremediation Processes: a Review. Journal of Contaminant Hydrogeology, 19, 171-203.

SUTHERSAN, S.S. (1996). *In Situ* Air Sparging. In Situ Treatment Technology. Nyer, E.K., et al. éds., Lewis Publishers, Boca Raton, FL. 195-220.

SYLVESTRE, M. et GRENIER, C. (1987). L'eau souterraine. une ressource à exploiter, Gouvernement du Québec, Ministère de l'environnement du Québec, Québec, Canada.

TAHRAOUI, K., SAMSON, R. et RHO, D. (1995). BTX Degradation and Dynamic Parameters Interaction in a 50-L Biofilter, Third International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 6, San Diego, CA, 257-262.

TAYLOR, R.T., HANNA, M.L., SHAH, N.N. et SHONNARD, D.R. (1993). *In Situ* Bioremediation of Trichloroethylene-Contaminated Water by a Resting-Cell Methanotrophic Microbial Filter. Hydrological Sciences, 38 (4), 323-342.

THOMAS, J.M. et WARD, C.H. (1989). *In-Situ* Bioremediation of Organic Contaminants in the Subsurface. Environmental Science and Technology, 23 (7), 760-766.

TODD, D.K. (1980). *Groundwater Hydrology*, 2nd Ed. John Wiley & Sons, New York, 535.

VAN GROENESTIJN, J.W. et HESSENLINK, P.G.M. (1993). Biotechniques for Air Pollution Control. Biodegradation, 4, 283-301.

VAN SWAAIJ, W.P.M., CHARPENTIER, J.C. et VILLERMAUX, J. (1969). Residence Time Distribution in the Liquid Phase of Trickle Flow in Packed Columns. Chemical Engineering Science, 24, 1083-1095.

VERHEUL, J.H., HEERSCHE, J., BRUIN, W.D., SCHRAA, G., VIS, P. et RINZEMA, A. (1993). Development of a Bioreactor to Purify Groundwater. Second International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, vol. 2, San Diego, CA. 20-31.

WEBER, J.K. et BARKER, J.F. (1993). Field-Scale Remediation of Hydrocarbon Contaminated Soil and Water Using an In Situ Funnel-and-Gate Strategy. Third Annual Symposium on Groundwater and Soil Remediation. Quebec, Canada, 45-49.

YERUSHALMI, L., MANUEL, M.F. et GUIOT, S.R. (1997). Gasoline Biodegradation in a Permeable Bioreactive Barrier, Fourth International In Situ and On-Site Bioremediation Symposium, vol. 4, New Orleans, LA. 197-202.

ZUIDERWEG, G.J. KUNESH, J.G. et KING, D.W. (1993). A Model for the Calculation of the Effect of Maldistribution Efficiency of a Packed Bed Column. Trans. Inst. Chem. Engrs., 71, 38-44.

ZYTNER, R.G. (1994). Sorption of Benzene, Toluene, Ethylbenzene and Xylenes to Various Media. Journal of Hazardous Materials, 38, 113-126.

ANNEXE A : NORMES ET CRITÈRES

A.1 CRITÈRES GÉNÉRIQUES APPLICABLES AUX CAS DE CONTAMINATION DES EAUX SOUTERRAINES (MEF, 1998)

La grille de critères de qualité d'eau présente pour plusieurs substances, les critères d'eau établis pour l'eau de consommation, de même que les critères s'appliquant aux situations où les eaux souterraines contaminées font résurgence dans les eaux de surface ou s'infiltrent dans les réseaux d'égout. Cette grille fournit également les limites de quantification (LQD) associées à chacune des substances.

Les critères retenus ont été principalement tirés de publications officielles sur la qualité des eaux au Canada et au Québec. Certains critères proviennent également de l'OMS et de l'USEPA. Les références complètes se trouvent à la fin de la grille de critères.

Tableau A.1 : Extrait de la grille de critères applicables aux cas de contamination des eaux souterraines¹

	Limite analytique (LQD)	Critères d'usage (µg/L)	
	(µg/L)	Eau de consommation ^{2,3}	Eau de surface et égouts ⁴
III- COMPOSÉS ORGANIQUES VOLATILS / HYDROCARBURES AROMATIQUES MONOCYCLIQUES			
Benzène	0.15	5	590
Toluène	0.12	24 ³	200
Éthylbenzène	0.14	2.4	420
Xylènes (o. m. p)	0.39	300 ³	820
XI- PARAMÈTRES INTÉGRATEURS			
Hydrocarbures pétroliers C ₁₀ à C ₅₀	-	-	3500 ⁵

Colonne 1 : Les limites de quantification (LDQ) ont été établies par le Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec.

Colonne 2 : Les critères d'eau de consommation représentent pour la plupart des normes ou recommandations pour l'eau potable élaborées par Santé Canada (1996), l'Agence américaine de protection de l'environnement (EPA) ou l'Organisation

mondiale de la santé (OMS). Toutefois, celles élaborées par Santé Canada ont été retenues en priorité. En l'absence de recommandations canadiennes, le plus sévère des critères de l'EPA ou de l'OMS fut choisi. En ce qui a trait à l'OMS, les recommandations ont été ajustées pour un risque additionnel de cancer de 1×10^{-6} .

La liste de critères proposée dans le cas d'un usage de l'eau souterraine comme eau de consommation doit être considérée comme étant intérimaire car le Ministère envisage d'entamer une validation en collaboration avec le MSSS [Ministère de la santé et des services sociaux].

Lors de l'interprétation de résultats analytiques d'eau souterraine destinée à la consommations, l'implication des intervenants de santé publique est nécessaire.

Colonne 3 : Les critères de qualité lors de la résurgence de l'eau souterraine dans l'eau de surface et lors de l'infiltration de l'eau souterraine dans les égouts sont tirés du document « *Critères de qualité de l'eau* » (MENVIQ, 1990, révisé en 1992) élaboré par la Direction des écosystèmes aquatiques du MEF, ainsi que la mise à jour de 1998. La valeur retenue pour chaque paramètre correspond à la plus basse des quatre valeurs suivantes : 1 X CTAA, 100 X CTAC, 100 X CCOA, 100 X CFP.

CTAA : Critère de toxicité aquatique aiguë

CTAC : Critère de toxicité aquatique chronique

CCOA : Critère de contamination des organismes aquatiques

CFP : Critère pour la faune piscivore

Le terme « égouts » désigne aussi bien les égouts pluviaux, sanitaires ou combinés.

Dans le cas de l'infiltration de l'eau souterraine dans un égout municipal, il faut vérifier auprès de la municipalité propriétaire de l'Égout si elle possède des normes pour les contaminants d'intérêt. Ces normes pourraient être appliquées avec l'accord de la municipalité lors de l'infiltration d'eau souterraine dans l'égout. Si la municipalité ne possède pas de règlement relatif aux rejets dans ses égouts, l'utilisation des critères « eau de surface et égouts » sera évaluée sur une base de cas par cas.

Notes :

- 1 : Des critères de qualité de l'eau ne sont pas publiés, ni établis, pour tous les paramètres ni pour tous les usages. La liste publiée n'est donc pas limitative, ni exhaustive. L'utilisateur doit signaler la présence de tous les paramètres détectés, même si la liste ne fournit actuellement pas de critère pour ces paramètres.

- 2 : Les critères pour l'eau de consommation sont exprimés en concentrations maximales acceptables (CMA) et s'appliquent à des échantillons non filtrés.
 - 3 : Des objectifs d'ordre esthétiques sont disponibles pour certains paramètres. Les objectifs esthétiques élaborés par Santé Canada ont été retenus à cette fin.
 - 4 : Concentrations totales pour des échantillons non filtrés.
 - 5 : Dans le cas de l'infiltration de l'eau souterraine dans des égouts sanitaires seulement, **le critère d'hydrocarbures pétroliers C₁₀ à C₅₀ est de 3500 µg/L**. Ce critère provient de celui préconisé depuis 1988 dans la « *Politique de réhabilitation des terrains contaminés* » pour les huiles et graisses minérales dans l'eau (ancien critère C), diminué d'un facteur de 30 % pour tenir compte du changement d'étalon analytique.
- : Pas de critère actuellement (mars 1998).

**Tiré de la
Politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés
Ministère de l'environnement et de la faune (MEF)
Gouvernement du Québec
Avril 1998**

**ANNEXE B : COMPOSITION DE L'ESSENCE
ORDINAIRE ET TEMPÉRÉE**

Tableau B.1 : Exemple de composition d'une essence ordinaire (Cookson, 1995)

Ordre	Composé	Formule chimique	Poids moléculaire (g)	Fraction massique
1	Propane	C ₃ H ₈	44,1	0,0001
2	Isobutane	C ₄ H ₁₀	58,1	0,0122
3	<i>n</i> -butane	C ₄ H ₁₀	58,1	0,0629
4	trans-2-Butène	C ₄ H ₈	56,1	0,0007
5	cis-2-Butène	C ₄ H ₈	56,1	0,0000
6	3-Méthyl-1-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0006
7	Isopentane	C ₅ H ₁₂	72,2	0,1049
8	1-Pentène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
9	2-Méthyl-1-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
10	2-Méthyl-1,3-butadiène	C ₅ H ₈	68,1	0,0000
11	<i>n</i> -pentane	C ₅ H ₁₂	72,2	0,0586
12	trans-2-Pentène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
13	2-Méthyl-2-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0044
14	2-Méthyl-1,2-butadiène	C ₅ H ₈	68,1	0,0000
15	3,3-Diméthyl-1-butène	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0049
16	Cyclopentane	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
17	3-Méthyl-1-pentène	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
18	2,3-Diméthylbutane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0730
19	2-Méthylpentane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0273
20	3-Méthylpentane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0000
21	<i>n</i> -Hexane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0283
22	Méthylcyclopentane	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
23	2,2-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,0	0,0076
24	2,3-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,0	0,0076
25	Cyclohexane	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
26	2,3-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0390
27	3-Méthylhexane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0000
28	3-Éthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0000
29	2,2,4-Triméthylpentane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0121
30	<i>n</i> -Heptane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0063
31	Méthylcyclohexane	C ₇ H ₁₄	98,2	0,0000
32	2,2-Diméthylhexane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0055
33	2,3-Diméthylhexane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0055
34	2,3,4-Triméthylpentane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0121
35	2-Méthylheptane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0155
36	3-Méthylheptane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0000
37	<i>n</i> -Octane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0013
38	2,4,4-Triméthylhexane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0087
39	2,2-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
40	2,3-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
41	2,4-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
42	3,3,4-Triméthylhexane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0281
43	2,2,4,4-Tetraméthylpentane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0,0000

Tableau B.1 (suite)

Ordre	Composé	Formule chimique	Poids moléculaire (g)	Fraction massique
44	2,2,4-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0,0105
45	3,3,5-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0,0000
46	<i>n</i> -Propylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0,0841
47	2,3,4-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0,0000
48	1,3,5-Triméthylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0,0411
49	1,2,4-Triméthylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0,0213
50	Méthylpropylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0,0351
51	Diméthyléthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0,0307
52	1,2,4,5-Tetraméthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0,0133
53	1,2,3,4-Tetraméthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0,0129
54	1,2,4-Triméthyl-5-éthylbenzène	C ₁₁ H ₁₆	148,2	0,0405
55	<i>n</i> -Dodécane	C ₁₂ H ₂₆	170,3	0,0230
56	Naphtalène	C ₁₀ H ₈	128,2	0,0045
57	<i>n</i> -Hexylbenzène	C ₁₂ H ₂₀	162,3	0,0000
58	Méthylnaphtalène	C ₁₁ H ₁₀	142,2	0,0023
TOTAL		---	---	0,9969

Tableau B.2 : Principaux constituants d'une essence ordinaire (Cookson, 1995)

Constituant	Pourcentage
Isopentane	10,5
<i>n</i> -Propylbenzène	8,4
2,3-Dyméthylbutane	7,3
<i>n</i> -Butane	6,3
<i>n</i> -Pentane	5,9
TOTAL	53,5

Tableau B.3 : Exemple de composition d'une essence météorisée (Cookson, 1995)

Ordre	Composé	Formule chimique	Poids moléculaire (g)	Fraction massique
1	Propane	C ₃ H ₈	44,1	0,0000
2	Isobutane	C ₄ H ₁₀	58,1	0,0000
3	<i>n</i> -butane	C ₄ H ₁₀	58,1	0,0000
4	trans-2-Butène	C ₄ H ₈	56,1	0,0000
5	cis-2-Butène	C ₄ H ₈	56,1	0,0000
6	3-Méthyl-1-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
7	Isopentane	C ₅ H ₁₂	72,2	0,0200
8	1-Pentène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
9	2-Méthyl-1-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
10	2-Méthyl-1,3-butadiène	C ₅ H ₈	68,1	0,0000
11	<i>n</i> -pentane	C ₅ H ₁₂	72,2	0,0114
12	trans-2-Pentène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
13	2-Méthyl-2-butène	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
14	2-Méthyl-1,2-butadiène	C ₅ H ₈	68,1	0,0000
15	3,3-Diméthyl-1-butène	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
16	Cyclopentane	C ₅ H ₁₀	70,1	0,0000
17	3-Méthyl-1-pentène	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
18	2,3-Diméthylbutane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0600
19	2-Méthylpentane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0000
20	3-Méthylpentane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0000
21	<i>n</i> -Hexane	C ₆ H ₁₄	86,2	0,0370
22	Méthylcyclopentane	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
23	2,2-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,0	0,0000
24	2,3-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0100
25	Cyclohexane	C ₆ H ₁₂	84,2	0,0000
26	2,3-Diméthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,1020
27	3-Méthylhexane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0000
28	3-Éthylpentane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0000
29	2,2,4-Triméthylpentane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0000
30	<i>n</i> -Heptane	C ₇ H ₁₆	100,2	0,0800
31	Méthylcyclohexane	C ₇ H ₁₄	98,2	0,0000
32	2,2-Diméthylhexane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0000
33	2,3-Diméthylhexane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0100
34	2,3,4-Triméthylpentane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0000
35	2-Méthylheptane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0500
36	3-Méthylheptane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0000
37	<i>n</i> -Octane	C ₈ H ₁₈	114,2	0,0500
38	2,4,4-Triméthylhexane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
39	2,2-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
40	2,3-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0100
41	2,4-Diméthylheptane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0000
42	3,3,4-Triméthylhexane	C ₉ H ₂₀	128,3	0,0250

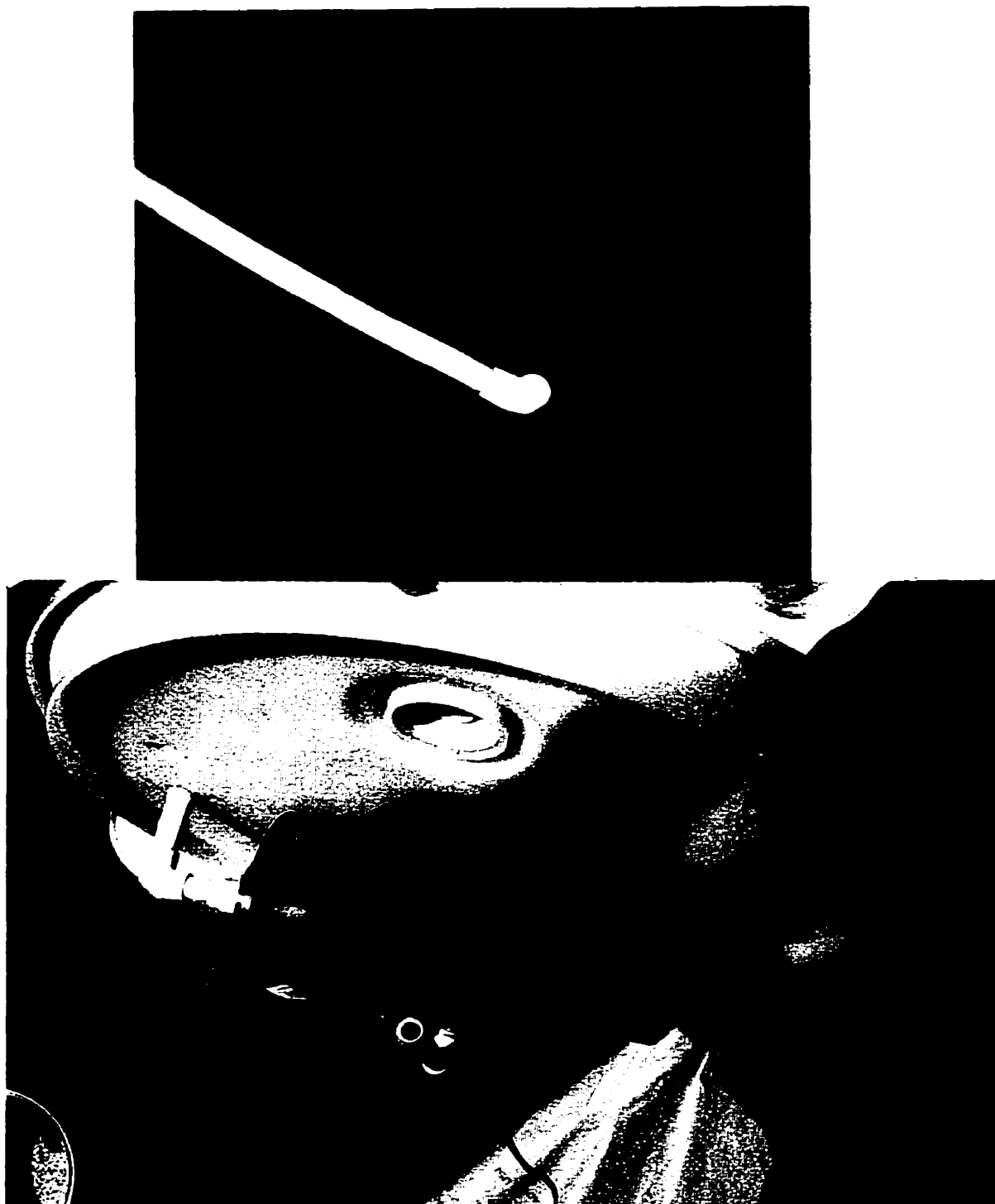
Tableau B.3 (suite)

Ordre	Composé	Formule chimique	Poids moléculaire (g)	Fraction massique
44	2,2,4-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0.0000
45	3,3,5-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0.0250
46	<i>n</i> -Propylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0.0829
47	2,3,4-Triméthylheptane	C ₁₀ H ₂₂	142,3	0.0000
48	1,3,5-Triméthylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0.0250
49	1,2,4-Triméthylbenzène	C ₉ H ₁₂	120,2	0.0250
50	Méthylpropylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0.0373
51	Diméthyléthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0.0400
52	1,2,4,5-Tetraméthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0.0400
53	1,2,3,4-Tetraméthylbenzène	C ₁₀ H ₁₄	134,2	0.0000
54	1,2,4-Triméthyl-5-éthylbenzène	C ₁₁ H ₁₆	148,2	0.0000
55	<i>n</i> -Dodécane	C ₁₂ H ₂₆	170,3	0.0288
56	Naphtalène	C ₁₀ H ₈	128,2	0.0100
57	<i>n</i> -Hexylbenzène	C ₁₂ H ₂₀	162,3	0.0119
58	Méthylnaphtalène	C ₁₁ H ₁₀	142,2	0.0000
TOTAL		---	---	1.0000

Tableau B.4 : Principaux constituants d'une essence météorisée (Cookson, 1995)

Constituant	Pourcentage
2,2-Diméthylheptane	12,4
2,3-Diméthylpentane	10,2
<i>n</i> -Propylbenzène	8,3
<i>n</i> -Heptane	8,0
TOTAL	49,4

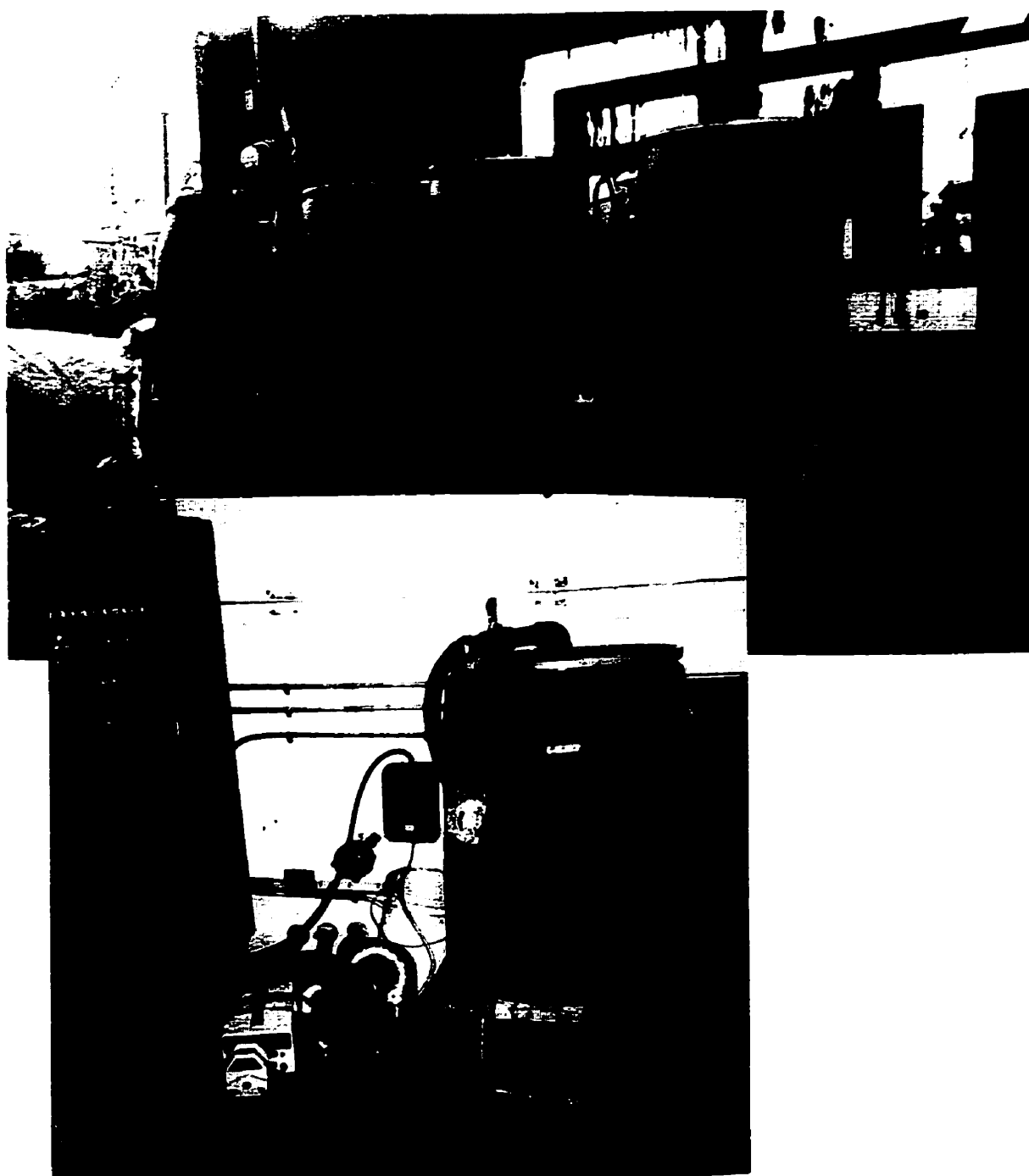
ANNEXE C : PHOTOGRAPHIES



EN HAUT : TOURBE GRANULAIRE NEUVE
EN BAS : PETIT BIOFILTRE À COV, FIXÉ AU COUVERCLE D'UNE UNITÉ PILOTE.



EN HAUT : VUE D'ENSEMBLE DU SITE OÙ ONT EU LIEU LES ESSAIS DE TERRAIN.
EN BAS : PUIITS DE CAPTAGE.



EN HAUT : INSTALLATION DES BIOFILTRES PILOTES SUR LE TERRAIN.
EN BAS : BASSIN DE RÉTENTION ET POMPES PÉRISTALTIQUES SERVANT À ALIMENTER
LES BIOFILTRES PILOTES.



PROBLÈMES DE DISTRIBUTION AVEC LES PLAQUES PERFORÉES EN PERCOLATION.
En haut : dessus de la plaque. En bas : tourbe en dessous de la plaque.



**EN HAUT : COLMATAGE DES DISTRIBUTEURS EN « H » ET DU MILIEU FILTRANT PAR
L'OXYDE FERRIQUE.**

EN BAS : TOURBE GRANULAIRE ÉMIETTÉE ET COMPACTÉE.



TOURBE GRANULAIRE RECOUVERTE D'OXYDE DE FER.

**ANNEXE D : PROTOCOLES EXPÉRIMENTAUX (PE) ET
PROTOCOLES STANDARDS D'OPÉRATION (PSO)**

D.1 PE-19A : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DU ^{14}C -TOLUÈNE SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR DE LA TOURBE GRANULAIRE



PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL	
Protocole #: 19A	Pages: 7
Version: 3	Date Début: 5 août-97
	Date fin : 22 septembre-97

Auteur: Geneviève Martineau

Approuvé par:

Josée Gagnon

Signature:

Josée Gagnon

Date: 97, 10, 17

Titre : Test de minéralisation en microcosmes du ^{14}C -toluène sous conditions aérobies à 10°C par de la tourbe granulaire.

Mots clés: tourbe granulaire, minéralisation, radioactivité, microcosmes, micro-organismes, eau souterraine synthétique, toluène, dpm.

1. EXPÉRIENCES ANTÉRIEURES

Deux essais de minéralisation ont préalablement été réalisés avec la tourbe granulaire. Le premier essai consistait à tester la dégradation du toluène par la tourbe granulaire à 25 °C (PE-19A, version 1). Un temps de latence d'environ 2 jours et de bons taux de minéralisation ont alors été obtenus, mais à cause de l'imprécision des contrôles de départ, il était impossible de déterminer avec exactitude les pourcentages de minéralisation finaux (un pourcentage final supérieur à 100 % a été obtenu...).

Lors du second essai, des microcosmes comprenant deux types de tourbe granulaire (convection et micro-ondes) ont servi à étudier la dégradation du toluène par ces tourbes à 10 °C (PE-19A, version 2). D'une part, la tourbe granulaire fabriquée au micro-ondes a donné des résultats semblables à ceux obtenus par Dominique Forget (i.e. 5 jours de temps de latence, 70 % de minéralisation, plateau atteint après 15 jours). Malheureusement, il est impossible de comparer ces taux de minéralisation avec ceux obtenus lors des essais à 25 °C (PE-19A, version 1), à cause du manque de précision dans l'échantillonnage (points d'échantillonnage trop éloignés pour donner une pente précise). Cependant, il est évident que le pourcentage final de minéralisation obtenu à 25 °C est beaucoup plus élevé qu'à 10 °C et le plateau est atteint après 8 jours au lieu de 15.

D'autre part, les triplicatas de la tourbe chauffée au four à convection ne se suivaient pas du tout. Dans un des trois microcosmes suivis, un temps de latence de 15 jours a été observé, puis l'atteinte de 51 % de minéralisation après 27 jours. Pour les deux autres, aucune minéralisation significative n'a été détectée après 27 jours.

2. OBJECTIF(S)

Lors de son projet de maîtrise à la Chaire, Dominique Forget a démontré les bonnes propriétés microbiologiques de la tourbe granulaire produite par Premier Tech (Forget, 1997). Cependant, depuis les tests en laboratoire effectués par Dominique Forget, l'entreprise a apporté certaines modifications à son procédé de fabrication de la tourbe. L'objectif de cette expérience est donc de vérifier que malgré les changements dans le mode de production, les micro-organismes indigènes contenus dans la tourbe granulaire ont toujours la capacité de dégrader le toluène.

Quatre séries de microcosmes seront réalisées pour vérifier l'effet du bullage d'air et du trempage de la tourbe (soient les conditions d'aération) avant le départ des tests de minéralisation. Chaque série est composée de triplicata et d'un témoin abiotique.

1. Tourbe granulaire et eau souterraine, laissés en contact pendant plusieurs jours (dans le but de laisser décanter la tourbe et d'avoir des conditions d'aération stables tout au long des essais de minéralisation) et non bullés
2. Tourbe granulaire et eau souterraine, laissés en contact pendant plusieurs jours et bullés une heure avec de l'air avant l'injection de radioactivité ;
3. Tourbe granulaire et eau souterraine mis en contact juste avant l'injection de radioactivité et non bullés ;
4. Tourbe granulaire et eau souterraine mis en contact et bullés une heure avec de l'air avant l'injection de radioactivité.

Ces essais seront réalisés de manière à pouvoir comparer les taux de dégradation obtenus à ceux présentés par Dominique Forget. De plus, les résultats permettront de déterminer si c'est le manque d'oxygène ou la mise en contact prolongée de la tourbe avec l'eau à 25°C avant l'injection qui a empêché la minéralisation du toluène lors des essais du protocole PE19-A (version 2).

3. MATERIEL

3.1 Microcosmes

12 bouteilles sérologiques (125 ml), i.e. 3 X (3 - 1 témoin NaN_3)
12 valves mininert avec septums (Supelco)
12 tubes d'échantillonnage en verre de 5 ml
960 ml d'eau souterraine synthétique (voir partie 3.2)
24 g de tourbe granulaire égrainée (Premier Tech)
solution radioactive de toluène (250 000 dpm/ μl)
solution de KOH (1N)
seringue de 30 ml (pour le KOH)
seringue de 0.5 ou 1 μl pour injecter le toluène radioactif

3.2 Eau souterraine synthétique

La composition de l'eau souterraine synthétique, basée sur la composition de l'eau souterraine de Montréal issue d'un puits situé près de l'ancienne carrière Miron, a été développée par Nathalie Ross. La recette de l'eau souterraine synthétique est présentée au **Tableau 1**.

Tableau 1 : Recette de l'eau souterraine synthétique

Solution	g/l	vol/l
FeCl ₂	0.0014	0.140 ml, sol'n 1 %
NaCl	0.6173	6.17 ml, sol'n 10 %
Na ₂ CO ₃	0.6784	6.78 ml, sol'n 10 %
KNO ₃	0.0061	0.610 ml, sol'n 1 %
K ₂ HPO ₄	0.0107	0.107 ml, sol'n 1 %
CaCO ₃	0.0150	0.150 ml, sol'n 10 %
MgSO ₄	0.0188	0.188 ml, sol'n 1 %
H ₂ O distillée		985.85 ml
TOTAL		1000 ml

4. METHODOLOGIE

4.1 Préparation des microcosmes

Dans cette partie, les microcosmes sont désignés par la série à laquelle ils appartiennent. Toutes les séries sont décrites au tableau 2.

- Préparer l'eau souterraine synthétique : ajouter les volumes inscrits à la troisième colonne du Tableau 1 à de l'eau distillée pour faire 1 litre de solution au total. Ajuster le pH de la solution entre 6 et 8 avec du H₂SO₄ (1N) et noter le pH exact.
- Egrainer la tourbe à l'aide d'un mortier de manière à ce qu'elle puisse entrer dans une bouteille sérologique.
- Mettre 2.00 ± 0.01 g de tourbe égrainée dans chacun des 12 microcosmes (voir Tableau 2).
- Ajouter 80.0 ± 0.5 ml d'eau souterraine synthétique dans les bouteilles des séries 1 et 2.
- Après avoir ajouté l'eau, mettre les bouteilles sur une plaque agitatrice à 25°C (pour comparer avec PE19-A, version 2) et attendre 7 jours pour que la tourbe absorbe l'eau et cale au fond des bouteilles.
- Ajouter 0.02 % p/v (0.0164 g) de nitrure de sodium (NaN₃) dans les microcosmes témoins.
- Placer les bouteilles des séries 1 et 2 ainsi que l'eau souterraine de réserve à 10 °C.
- Au moment de partir les microcosmes :
 - ajouter 80.0 ± 0.5 ml d'eau souterraine aux séries 3 et 4 et le volume de solution tampon ajoutée aux microcosmes des séries 1 et 2 :
 - buller avec de l'air les séries 2 et 4 de microcosmes pendant une heure.
- Mettre les tubes d'échantillonnage dans les microcosmes et y mettre 1 ml de KOH (1N).
- Injecter 0.4 µl de toluène radioactif (250 kdpm/µl correspond à 100 kdpm par microcosme) de manière à avoir une concentration totale de 4.35 mg/l dans chaque microcosme (voir annexe calculs).

- Effectuer des contrôles avant pendant et après les injections dans les microcosmes.
- Incuber les microcosmes à 10 °C, à la noirceur et agités.

Tableau 2 : Description des microcosmes

#	Description	Toluène (0,4 µl)	Tourbe granulaire (2 g)	Eau souterraine synthétique (80 ml)	Nitrure de sodium, NaN ₃ (0.0164 g)	Bullage d'air 1 heure	Tourbe trempée plusieurs jours
1A	Tnoyée1	x	x	x			x
1B	Tnoyée2	x	x	x			x
1C	Tnoyée3	x	x	x			x
T1	TÉMOIN 1	x	x	x	x		x
2A	Tnoyée+O ₂ 1	x	x	x		x	x
2B	Tnoyée+O ₂ 2	x	x	x		x	x
2C	Tnoyée+O ₂ 3	x	x	x		x	x
T2	TÉMOIN 2	x	x	x	x	x	x
3A	Tflottante1	x	x	x			
3B	Tflottante2	x	x	x			
3C	Tflottante3	x	x	x			
T3	TÉMOIN 3	x	x	x	x		
4A	Tflottante+ O ₂ 1	x	x	x		x	
4B	Tflottante+ O ₂ 2	x	x	x		x	
4C	Tflottante+ O ₂ 3	x	x	x		x	
T4	TÉMOIN 4	x	x	x	x	x	

4.2 Échantillonnage de microcosmes

Effectuer l'échantillonnage (selon PSO-A10) aux 48 heures.

5. RÉFÉRENCES

Forget, D. 1997. Caractérisation d'un nouveau milieu filtrant pour la biofiltration *in situ* des BTEX dans les eaux souterraines. Mémoire de maîtrise, Département de Génie chimique, École Polytechnique de Montréal, 137 pages.

6. RESULTATS ET RECOMMANDATIONS

Lors de la réalisation de cette expérience, la série de bouteilles contenant de la tourbe noyée (tourbe granulaire émiettée à laquelle on a ajouté de l'eau souterraine synthétique et qu'on a placée sur une plaque agitatrice à 200 rpm, 25 °C) a présenté un résultat inattendu. En effet, après 6 jours de temps de contact, le pH a été mesuré dans l'eau de ces microcosmes (auxquels aucune radioactivité ou contaminant n'avait été encore ajouté) : un pH moyen de 4,7 a été mesuré, et ce, malgré le fait que le pH de l'eau avait préalablement été ajusté à 7,5. Ceci s'explique par le fait que la tourbe contient naturellement des acides humiques qui semblent conférer un pouvoir acide à l'eau après quelques jours de trempage.

Afin de régler ce problème, une correction du pH et un tamponnage ont été effectués dans chacun des microcosmes. La méthode qui a été employée est décrite ci-dessous.

MATÉRIEL

solution tampon phosphate 1M à pH 7

pour 100 ml de solution : 39,2 ml NaH_2PO_4 (1M) et 60,8 ml de K_2HPO_4 (1M)

solution KOH 1N

MÉTHODE

- Mesurer le pH initial dans l'eau des bouteilles où la tourbe a trempé (séries 1 et 2).
- Pour le microcosme 1A (le premier) :
 - Ajouter de la solution tampon par 100 µl dans le microcosme jusqu'à ce que le pH ne varie plus significativement lorsqu'on en ajoute.
 - Afin de s'approcher le plus possible d'un pH neutre, ajouter du KOH 1N par 100 µl jusqu'à ce que le pH ne varie plus significativement.
 - Ajouter 1 ml supplémentaire de solution tampon afin de conférer un pouvoir tampon à l'eau souterraine (car le fait d'ajouter de la base à la suite du tampon a enlevé le pouvoir tampon du milieu) et mesurer le pH final.
- Ajouter, dans le même ordre, les mêmes quantités de solution tampon et de KOH dans tous les autres microcosmes.

Les quantités ayant été ajoutées ainsi que les pH mesuré dans les microcosmes sont présentés au **Tableau 3**

Tableau 3 : Mesure du pH dans les microcosmes ayant trempé pendant une semaine dans l'eau souterraine synthétique

Identificateur	pH avant ajustement (pH initial)	pH après ajout de 2,5 ml de sol'n tampon 1M, pH 7	pH après ajout de 500 µl de KOH 1N	pH après ajout de 1 ml supplémentaire de sol'n tampon 1M, pH 7 (pH final)
1A	4,4	6,5	—	6,7
1B	4,7	6,5	6,6	6,7
1C	—	6,5	6,7	6,8
T1	—	—	—	—
2A	4,7	6,4	6,6	6,7
2B	4,7	6,5	6,7	6,8
2C	4,7	6,5	6,7	6,8
T2	—	—	—	—

Note : aucun pH n'a été mesuré dans les témoins car le nitrure de sodium avait déjà été ajouté. Les pH mesurés ont été obtenus après un temps de stabilisation de la sonde d'environ 5 minutes. Un barreau magnétique servait à agiter le milieu.

L'ajout de la solution tampon a cependant comme effet de modifier les concentration de minéraux contenus dans l'eau souterraine synthétique. Les concentration corrigées sont : 2,0625 g/l de NaH_2PO_4 ; 4,6438 g/l de K_2HPO_4 (incluant celui déjà contenu dans la composition initiale de l'eau souterraine synthétique) et 0,35 g/L de KOH. De plus, le volume total de liquide dans chacun des microcosmes n'est plus de 80 ml, mais de 84 ml.

Globalement, un ajout de 0,04 M de solution tampon a été ajouté dans les microcosmes (en ne considérant pas le KOH). Dans les essais à venir, il serait préférable d'ajouter la solution tampon phosphate directement à l'eau souterraine en quantité de 0,05 M. De cette manière, l'eau ajoutée aux microcosme aurait déjà un pouvoir tampon suffisant pour empêcher l'acidification du milieu par la tourbe.

7. ANNEXE : CALCULS

Toluène : C_7H_{10} $M = 92,14$
 $\rho = 0,87$ ($\rho_{\text{eau}} = 1$) kg/l ou g/ml
 $P_{\text{vap}} = 52,5$ mmHg à 38°C

Pour avoir une concentration de 4,35 mg/l de toluène dans un microcosme :

$$4,35 \text{ mg/l} \cdot 80 \text{ ml} \cdot 1 \text{ L}/1000 \text{ ml} = 0,348 \text{ mg/microcosme}$$

$$\text{or, } \frac{0,348 \text{ mg}}{0,87 \text{ g/ml}} \cdot 1 \text{ g}/1000 \text{ mg} = 4,0 \times 10^{-4} \text{ ml} = 0,4 \text{ µl/microcosme}$$

D.2 PE-19C : CARACTÉRISATION HYDROSATIQUE ET HYDRODYNAMIQUE DE DEUX CONFIGURATIONS DE BIOFILTRE PILOTE À BASE DE TOURBE GRANULAIRE (EN PERCOLATION ET EN ÉCOULEMENT ASCENDANT).



PROTOCOLE EXPERIMENTAL	
Protocole #: 19C	Pages: 8
Version: 3	Date début: 5 mai 98
	Date fin 3 juillet 98

Auteur: Geneviève Martineau	Signature: 
Approuvé par: Josée Gagnon	Date: 98, 07, 02

Titre : Caractérisation hydrostatique et hydrodynamique de deux configurations de biofiltre pilote à base de tourbe granulaire (en percolation et en écoulement ascendant). TRACEUR = Tritium.

Mots-clés: tourbe granulaire, biofiltre pilote, temps de résidence, écoulement, nombre de Peclet, distribution des temps de séjour (DTS), consommation d'oxygène dissous, modèle de diffusion, rétention, radioactivité.

1. OBJECTIF(S)

Prochainement, des biofiltres pilotes seront implantés sur un terrain d'industrie pétrolière afin d'étudier et de développer un système de biofiltration à base de tourbe granulaire pour la réhabilitation des eaux souterraines contaminées par des BTEX. Mais avant de procéder aux essais de terrain, les propriétés hydrauliques des biofiltres pilotes doivent être vérifiées.

Le but de cette expérience est donc de déterminer, par un essai de DTS, le type d'écoulement (piston vs CSTR) dans les biofiltres pilotes afin de mieux connaître le comportement du liquide à l'intérieur de ces unités. Une analyse des courbes obtenues par essai de traceur permettra ensuite de déterminer le temps de résidence moyen du liquide au sein des biofiltres ainsi que la qualité de la distribution (présence de volumes morts, chemins préférentiels, etc.). De plus, les paramètres obtenus pourront éventuellement servir à la mise à l'échelle de biofiltres industriels. Enfin, la connaissance de la qualité de la distribution et de l'écoulement dans les unités de biofiltration, permettra de mieux comprendre les résultats de dégradation et l'efficacité de traitement obtenus.

Deux configurations de biofiltres seront testées : un lit percolant et un lit saturé avec écoulement ascendant.

L'expérience se divise en trois étapes correspondant aux études hydrostatique et hydrodynamique des biofiltres pilotes et à la détermination de la consommation d'oxygène dissous au sein de ces unités en l'absence de contaminants. Chacune de ces étapes est présentée dans les sections qui suivent.

2. PROPRIÉTÉS HYDROSTATIQUES

Parmi les propriétés hydrostatiques des lits filtrants (i.e. en l'absence d'écoulement), se trouvent les rétentions. En effet, la structure d'un biofiltre à base de tourbe granulaire comprend trois phases (solide, liquide et gazeuse) chacune étant caractérisée par une rétention « ϵ ». Leur définition est donnée ici (tiré de Bélanger (1994)) :

- 1) la rétention solide (ϵ_s) représente le rapport du volume des solides (la tourbe) excluant le volume des pores, sur le volume total du lit :
- 2) en mode de percolation, le gaz s'écoule dans une partie des espaces entre les particules qui correspondent à la rétention gazeuse (ϵ_g) ;
- 3) la rétention liquide (ϵ_L) se subdivise comme suit :
 - la rétention liquide statique (ϵ_{Ls}) qui représente le liquide interne capturé à l'intérieur des pores de la tourbe et non drainable, le liquide externe non drainable retenu entre les particules par capillarité est inclus dans cette proportion du liquide (il constitue moins de 5 % de cette phase) ;
 - la rétention liquide dynamique (ϵ_{Ld}) représente le liquide externe s'écoulant à l'extérieur des particules solides.

Naturellement, la proportion des diverses rétentions dépend du remplissage, du matériel (tourbe) utilisé, de la taille des particules, de leur porosité et des propriétés du liquide (Kohler et Richarz, 1985). Grosset et coll. (1987) mentionnent que le remplissage du réacteur de tourbe affecte, d'une fois à l'autre, la mesure des propriétés hydrodynamiques d'un lit de tourbe, et peut rendre par le fait même la reproductibilité des résultats difficile.

La détermination préliminaire des différentes rétentions en condition statique (sans écoulement de fluide) sera menée en mode submergé, tel que décrit par Bélanger (1994). Tout d'abord, il s'agit de saturer le lit de tourbe ($V_{\text{réacteur}}$) avec un volume connu d'eau (V_{eau}). La quantité d'eau totale qui s'en écoule ($V_{\text{drainé}}$) est ensuite notée.

2.1 Matériel et méthodes

Pour les essais de cette section, le matériel suivant sera nécessaire :

bécher de 2000 mL (pour contenir la tourbe et l'eau de l'essai hydrostatique) ;

bécher de 1000 mL (pour faire un poids sur le dessus de la tourbe afin qu'elle ne flotte pas) ;

tourbe granulaire ;

eau ;

cylindres gradués, ballon jaugés.

- Peser le bécher vide de 2000 mL ;
- Remplir le bécher de 2000 mL de tourbe (jusqu'à la ligne du 2 L) ;
- Peser le bécher et la tourbe (pour avoir la masse de tourbe sèche) ;
- Saturer le lit de tourbe, i.e. verser de l'eau, en notant le volume ajouté (V_{eau}), jusqu'à ce que l'eau arrive au bord de la tourbe. Il faudra réaliser cet essai graduellement (sur 3 jours) afin de laisser le temps à la

tourbe de bien absorber l'eau;

- Vider le b cher de son eau en mesurant le volume d'eau drain  ($V_{\text{drain }}$).

  partir de ces mesures, les r tentions liquides statique et dynamique respectivement ϵ_{Ls} et ϵ_{Ld} sont calcul es :

$$\epsilon_{Ls} = (V_{\text{eau}} - V_{\text{drain }}) / (V_{\text{r acteur}})$$

$$\epsilon_{Ld} = \epsilon_g = V_{\text{drain }} / V_{\text{r acteur}}$$

Il est   noter qu'en mode submerg , la r tention liquide dynamique est en fait  gale   la r tention gazeuse du lit filtrant. Enfin la r tention solide (ϵ_s) est calcul e   partir de la masse s che ($M_{\text{s che}}$) du lit filtrant :

$$\epsilon_s = (M_{\text{s che}} / \rho) / V_{\text{r acteur}} \quad (\text{B langer, 1994})$$

- Effectuer cet essai en triplicata, de mani re   estimer un  cart-type tenant compte des diff rences de remplissage.

3. PROPRI T S HYDRODYNAMIQUES (ESSAI DE DTS)

Les propri t s hydrodynamiques des biofiltres sont  valu es lorsqu'il y a  coulement de fluide (d'eau dans le cas pr sent) au travers du lit. La perm abilit  est une caract ristique hydrodynamique importante qui a d j   t   valu e dans une exp rience ant rieure (PE19-B). Ainsi, seuls des essais de DTS seront r alis s lors de cette exp rience.

Les essais de DTS serviront   d terminer les param tres du mod le de dispersion et, dans la mesure du possible,   les comparer aux donn es trouv es dans la litt rature pour des syst mes semblables. Ce mod le a  t  choisi pour repr senter l' coulement   travers les deux types de biofiltres. Ce choix repose sur le fait que dans les deux configurations on peut supposer qu'il y a un r arrangement continu des  l ments de fluides, de mani re compl tement al atoire et sans lien avec leur trajet ant rieur. Dans un tel cas, Levenspiel et Fitzgerald (1983) sugg rent que le mod le dispersif Gaussien soit employ .

3.1 Mat riel et m thodes

Pour les essais des sections 4 et 5, le mat riel suivant sera n cessaire :

2 biofiltres (un pour chaque configuration):

Moustiquaire et grillage m tallique:

0.3 m³ de tourbe granulaire:

0.04 m³ de gravier 0-1/4" (2 chaudi res)

Tuyauterie:

1 pompe p ristaltique   deux t tes conventionnelles 18 LS (Masterflex) (les t tes de pompes Easy-Load brisent plus rapidement le tubing et comme la vitesse de rotation de la pompe est assez  lev e, il est pr f rable d'employer les t tes conventionnelles):

Tubing Norprene 6404 de Masterflex (ID=5/16") pour les t tes de pompes (le tubing Tygon R-1000 ne r siste pas plus de 24 heures... et ce, malgr  le fait qu'il soit con u sp cialement pour une longue vie dans les t tes de pompes p ristaltiques. De plus, il est utilisable sur une plage de temp ratures allant de 100   140 F !!):

Tubing PVC pour le reste:

Echantillonneurs faits   partir de vannes mininert   l'entr e et   la sortie de chacun des biofiltres:

R servoir tampon pour l'eau aliment e (contenant de 5 L). Ce r servoir servira   emp cher que les

fluctuations de pression dans le réseau de l'école influencent le débit alimenté aux biofiltres. Ainsi, l'eau du robinet coulera dans ce réservoir et la pompe péristaltique y puisera l'eau.

Dans chacun des biofiltres pilotes (barils de 200 L) :

- Mettre 20 L de gravier dans le fond (1 chaudière);
- Poser un grillage moustiquaire sur le dessus du gravier (afin de faciliter la séparation éventuelle des cubes de tourbe et du gravier);
- Mettre une hauteur supplémentaire de 60 cm de tourbe granulaire sur le grillage (un peu plus de 1½ poche de tourbe);
- Poser le grillage supérieur sur le dessus de la tourbe granulaire (pour empêcher la tourbe de flotter et de sortir des barils lorsque l'eau sera alimentée aux biofiltres);

Pour les essais de DTS uniquement :

Eau tritiée ($^3\text{H}_2\text{O}$):

seringue 250 μL pour injection de la solution de tritium radioactive;

seringue 5 mL pour échantillonnage à la sortie des biofiltres;

vials à scintillation pour y mettre les échantillons prélevés;

liquide à scintillation;

compteur à scintillation.

Pour les deux types d'écoulement et pour des taux de charge (Q) de 3 et de 10 $\text{m}^3/\text{m}^2\cdot\text{j}$ (soit 0.55 et 1.83 L/min et pour différentes conditions d'alimentation dans le biofiltre en percolation :

- Fixer un taux de charge hydraulique et faire circuler de l'eau à travers le milieu filtrant (en percolation ou en écoulement ascendant). Vérifier le débit avec le plus de précision possible (à l'aide d'un chronomètre et d'un cylindre gradué ou d'un ballon jaugé de 2 L).
- Calculer le temps de résidence hydraulique (TRH) théorique à quoi le taux de charge correspond ($t_m = \tau = V_{\text{eau libre}}/Q = V_{\text{total}} \cdot \text{porosité} / Q$).
pour $Q = 40 \text{ m}^3/\text{m}^2\cdot\text{j}$, $\text{TRH} = 150 \text{ L} \cdot 0.45 / 1.833 \text{ L/min} = 40 \text{ min}$
- Attendre une période équivalente à au moins trois temps de résidence hydraulique (3TRH).
- Préparer une solution radioactive permettant d'avoir $3.52 \cdot 10^7 \text{ dpm}$ (soit 16 μCi) par injection. Les calculs détaillés sont en annexe.
- Injecter 250 μL de la solution de tritium radioactif directement à l'entrée du biofiltre. Effectuer 3 contrôles de 250 μL pour connaître avec précision l'activité injectée.

Il s'agit de l'étape critique de la mesure de la DTS. En effet, l'injection du traceur doit se faire sur une période de temps vraiment courte par rapport au temps de séjour. De plus, il doit y avoir très peu de dispersion entre le point d'injection et l'entrée du réacteur (Fogler, 1992).

- À toutes les 2, 3, 5 ou 10 min (selon le temps total d'échantillonnage), prendre un échantillon de 2 mL d'eau à la sortie du biofiltre et le déposer dans un vial. Rincer trois fois la seringue avec de l'eau distillée entre chaque prise d'échantillon. L'échantillonnage doit se poursuivre pendant au moins 3TRH.

- Ajouter 10 mL de liquide à scintillation dans chacun des vials.
- Les échantillons prélevés sont lus par le compteur à scintillation Wallac (Protocole 2, exclusivement pour l'isotope).

4. CONSOMMATION VOLUMÉTRIQUE D'OXYGÈNE DISSOUS DANS LE FILTRE EN ABSENCE DE BTEX

Cette vérification permet d'évaluer le risque de développement de zones anaérobies au sein du bioréacteur et de quantifier la consommation abiotique d'oxygène (réactivité de l'oxygène à la matière organique).

4.1 Matériel et méthodes

Sonde à oxygène dissous (OD)

Pour les deux types d'écoulement et pour les taux de charge étudiés précédemment :

- Fixer un taux de charge hydraulique et faire circuler de l'eau à travers le milieu filtrant (en percolation ou en écoulement ascendant selon la configuration).
- Attendre le régime permanent.
- À l'aide de la sonde à OD, mesurer la quantité d'oxygène dissous avant et après le filtre.
- Incrémenter le taux de charge hydraulique et recommencer les mesures.

Le taux volumétrique de consommation d'oxygène dissous en absence de BTEX sera évalué par bilan de matière autour de chacun des biofiltres.

Afin d'analyser ces résultats, les taux de charge hydrauliques devront être transformés en temps de résidence. Par la suite, il sera possible de tracer la courbe de consommation d'oxygène dissous dans le filtre en absence de substrat en fonction du temps de résidence. Ceci permet de déterminer s'il y a dégradation du milieu filtrant par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire.

5. RÉFÉRENCES :

Bélanger, M.-C. (1994). Hydrodynamique d'un biofiltre à tourbe granulaire opéré en mode de percolation avec aération forcée. Mémoire de maîtrise. Département de Génie chimique. École Polytechnique de Montréal. 198 pages.

Fogler, H.S. (1992). Elements of Chemical Reaction Engineering. 2nd Ed., Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ. 838 pages.

Forget, D. (1997). Caractérisation d'un nouveau milieu filtrant pour la biofiltration *in situ* des BTEX dans les eaux souterraines. Mémoire de maîtrise. Département de Génie chimique. École Polytechnique de Montréal. 137 pages.

Levenspiel, O. et Fitzgerald, T.J. (1983). A Warning on the Misuse of the Dispersion Model. *Chemical Engineering Science*, **38** (3), pp. 489-491.

Premier Tech. (1997). Commentaires sur le protocole expérimental d'essais hydrodynamiques. Communications personnelles, 30 juillet 1997.

6. EXPÉRIENCES ANTÉRIEURES

Lors de son projet de maîtrise à la Chaire, Dominique Forget a démontré les intéressantes possibilités d'utilisation de biofiltres à base de tourbe granulaire produite par Premier Tech (Forget, 1997). Des tests hydrauliques ont été réalisés en laboratoire sur une colonne de tourbe granulaire de 0,5 L de volume, en saturation complète et à travers lequel s'écoulait un courant ascendant. L'étude de la distribution des temps de séjour a démontré que le biofiltre opérait en régime piston avec dispersion axiale intermédiaire, sans zone morte ni chemin préférentiel. En effet, pour des temps de résidence allant de 4 minutes à 8 heures, des nombres de Peclet entre 24,8 et 96,8 ont été obtenus.

La consommation d'oxygène dissous dans le filtre a été mesurée en absence de polluant (toluène) et une valeur de 0,5 mg/L.h a été obtenue.

Lors de la réalisation du protocole PE 19C (version 1), des essais de DTS ont été effectués sur les biofiltres pilotes de 200 L avec comme traceur une solution 300 mg/mL de NaCl. Des sondes à conductivité reliées à un système d'acquisition de données servaient à enregistrer la variation de la conductivité dans les courants entrant et sortant des unités pilotes. Cependant, certaines difficultés ont été rencontrées. Dans le biofiltre saturé à courant ascendant, une injection de 30 mL de solution saline était faite. Après 3 h, soit près de deux fois le temps de résidence théorique calculé à partir du volume utile, aucune variation dans la conductivité du courant de sortie n'était mesurée. Bien qu'aucune explication satisfaisante n'ait été trouvée pour expliquer ce phénomène, une vérification de la composition de l'eau dans laquelle de la tourbe granulaire a trempé a permis de déterminer que la tourbe libère des ions chlorures. Ainsi, le NaCl n'est pas un traceur valide pour les essais d'hydrodynamique d'un biofiltre à base de tourbe et un autre traceur a dû être choisi. Des essais d'adsorption sur la tourbe granulaire avec du KOH dont l'ion potassium avait été radio-marqué (^{42}K) ont montré que le KOH a tendance à s'adsorber ou à réagir avec les ions dégagés par la tourbe (PE 19C, version 2). Ainsi, le ^{42}K a aussi été rejeté comme traceur pour les essais d'hydrodynamique.

7. ANNEXE TRITIUM

7.1 Choix du $^3\text{H}_2\text{O}$ comme traceur

D'après les essais réalisés avec le NaCl et le KOH (PE 19C, version 1 et 2), il semble que les ions ne soient pas appropriés comme traceurs lorsque le milieu filtrant est la tourbe granulaire. En effet, la tourbe relargue une importante quantité d'ions qui peuvent réagir avec les traceurs ioniques. Ainsi, le choix du tritium est clair. Puisqu'il s'agit d'eau radio-marquée, il est certain que le comportement de ce traceur sera en tout point le même que l'eau qui circule dans l'unité de biofiltration.

7.2 Calcul de l'activation nécessaire

Pour effectuer l'essai de traceur dans les biofiltres, une solution de $^3\text{H}_2\text{O}$ sera donc injectée à l'entrée. Pour s'assurer que les échantillons pris à la sortie auront une activité suffisante pour être lue par le compteur à scintillation, certains calculs s'imposent.

Biofiltre saturé avec courant ascendant :

Le volume de liquide circulant dans le bioréacteur se calcule par :

$$V_{\text{total d'eau}} \cdot \text{rétention liquide dynamique} = V_{\text{eau libre}}$$

$$150 \text{ L} \cdot 0,45 \pm 0,02 = 70,5 \text{ L (au plus)}$$

Pour avoir au minimum 2000 dpm par échantillon de 2 mL à la sortie (i.e. 1000 dpm/mL) et supposant que la radioactivité injectée se disperse dans la moitié du volume total d'eau libre du bioréacteur :

$$1000 \text{ dpm/mL} \cdot 35 \text{ L} \cdot 1000 \text{ mL/L} = 3,5 \cdot 10^7 \text{ dpm au total à injecter}$$

Or, on a $2,2 \cdot 10^6 \text{ dpm} / \mu\text{Ci}$

Donc, $3,5 \cdot 10^7 = 16 \mu\text{Ci}$ par injection

De manière à ce que la quantité injectée soit précise, une seringue de 250 μL a été choisie. La solution radioactive doit donc avoir une activité de $1,408 \cdot 10^5 \text{ dpm}/\mu\text{L}$.

En tout, 2000 μL de solution chaude sera préparée. ($1,408 \cdot 10^5 \text{ dpm}/\mu\text{L} \cdot 2000 \mu\text{L} = 128 \mu\text{Ci}$).

Théoriquement, selon les spécifications du produit, la solution mère a une activité de $1 \mu\text{Ci}/\mu\text{L}$. Ainsi, la solution à préparer doit se composer de :

- 128 μL de solution mère ($1 \mu\text{Ci}/\mu\text{L}$)
- + 1 872 μL d'eau distillée
- 2 000 μL de solution $1,408 \cdot 10^5 \text{ dpm}/\mu\text{L}$

Par ailleurs, le compteur à scintillation a une efficacité d'environ 50 % sur la lecture du nombre de désintégrations par minute (CPM/DPM). Comme ce qui importe c'est la lecture fournie par le compteur et non l'activité réelle, la quantité d'eau tritiée a été doublée. Ainsi, 256 μL de solution mère ont été ajoutés en tout dans 1872 μL d'eau distillée.

Biofiltre en percolation :

Contrairement à l'écoulement saturé ascendant, le volume d'eau libre dans le biofiltre en percolation est beaucoup plus difficile à estimer puisqu'il dépend grandement du système de distribution. Aussi, différents essais devront être tentés pour optimiser le système de distribution de façon à ce que le temps de séjour du liquide soit le plus long possible. Pour simplifier, la même quantité de traceur sera injectée lors des essais de DTS avec la configuration en percolation que dans la configuration précédente.

8. RÉSULTATS ET RECOMMANDATIONS

Pour le biofiltre en percolation, le système de distribution (condition frontière) a une grande influence sur la courbe de DTS obtenue. Afin de vérifier différentes conditions d'alimentation, plusieurs distributeurs ont été testés :

- 1) plaque perforée (20 trous de $1/8''$) avec géotextile et distributeur en forme de H (fabriqué en PVC $1/2''$ et percé de 6 trous de $1/32''$) :
- 2) plaque perforée avec distributeur en H :
- 3) plaque perforée et un seul point d'alimentation au dessus :
- 4) système d'alimentation en teflon (tubing $1/8''$) avec un grand nombre de trous (percés avec une aiguille).

Lorsque l'injection est effectuée avant la plaque de distribution, une certaine dispersion a lieu sur la plaque, avant même que le traceur n'entre dans le réacteur. On pourrait être tenté d'éliminer cet effet en alimentant différemment le traceur (par exemple en versant une quantité connue de traceur de façon uniforme sur toute la plaque ou en injectant à travers un ou plusieurs trous de la plaque simultanément...). Cette perspective a été envisagée, mais rejetée car en changeant les conditions d'alimentation du traceur par rapport au reste du liquide, la réponse obtenue ne serait pas représentative de la distribution réelle du liquide dans le milieu filtrant. Ainsi, lors de l'analyse des courbes de DTS, on doit tenir compte du fait qu'un certain mélange a lieu avant l'entrée du réacteur.

9. ANNEXES: MODIFICATIONS

D.3 PE-19G : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DU ^{14}C -TOLUÈNE SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR LA TOURBE GRANULAIRE NEUVE ET USAGÉE, AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES



PROTOCOLE EXPERIMENTAL	
Protocole #: 19G	Pages: 25
Version: 1	Date Début: 15 sept 98
	Date fin: 22 oct - 98

Auteur: Geneviève Martineau
Approuvé par:

Josée Gagnon

Signature:

Date:

Titre : Test de minéralisation en microcosmes du ^{14}C -toluène sous conditions aérobies à 10°C par de la tourbe granulaire neuve et usagée, AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES

Mots clés: tourbe granulaire, minéralisation, radioactivité, microcosmes, micro-organismes, eau souterraine, terrain, fer, toluène, dpm.

1. EXPÉRIENCES ANTÉRIEURES

Les expériences reliées aux PE-19A (version 3) et PE-19D ont permis de s'assurer que la tourbe granulaire produite par Premier Tech contient toujours des micro-organismes capables d'effectuer la minéralisation du toluène, et ce, avec de l'eau souterraine synthétique ou de l'eau du robinet.

2. OBJECTIF(S)

Depuis maintenant 8 semaines, les biofiltres sont en fonction sur un terrain d'une importante compagnie pétrolière à Trois-Rivières. Cependant, aucune dégradation des BTEX dans l'eau souterraine n'a été observée. Le manque d'oxygène dissous dans l'eau semble être la raison la plus probable, mais il se peut aussi que la composition de l'eau y soit pour quelque chose. Afin de vérifier si la minéralisation du toluène radioactif est possible par les micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire, différents essais seront réalisés.

La première série sera constituée de tourbe granulaire "neuve" et d'eau souterraine. Cette série permettra une comparaison directe avec les résultats obtenus antérieurement (PE-19A et PE-19D). La seconde série sera constituée de tourbe granulaire "usagée", i.e. ayant passé les 8 semaines dans un biofiltre, donc ayant été en contact avec l'eau souterraine fortement contaminée, mais n'ayant pas été colmatée avec des dépôts ferriques. La dernière série sera composée de tourbe granulaire aussi "usagée", mais ayant accumulé une importante quantité de dépôt de fer. Ces deux dernières séries permettront de vérifier dans quelle mesure une acclimatation ou une mortalité des micro-organismes a pu avoir lieu et en quoi la présence de fer affecte l'activité microbienne de dégradation. De plus, elles permettront de voir si le lavage de la tourbe a pu modifier sa capacité à dégrader la tourbe.

Pour chaque série de microcosmes un quadruplicata biotique et un duplicata abiotique (témoin) seront préparés.

3. MATÉRIEL

3.1 Microcosmes

- 18 bouteilles sérologiques (125 ml), i.e. 3 x (4 + 2 témoins NaN_3)
- 18 valves mininert avec septums (Supelco)
- 18 tubes d'échantillonnage en verre de 5 ml
- Eau souterraine prélevée sur le terrain
- 12 g de tourbe granulaire "neuve" égrainée (Premier Tech)
- 64.5 g de tourbe granulaire « usagée » sans fer et égrainée
- 64.5 g de tourbe granulaire « usagée » avec fer et égrainée
- solution radioactive de toluène (250 000 dpm/ μl)
- solution de KOH (1N)
- seringue de 30 ml (pour le KOH)
- seringue de 0,5 ou 1 μl pour injecter le toluène radioactif
- solution tampon phosphate 1M à pH 7
 - pour 100 ml de solution : 39,2 ml NaH_2PO_4 (1M) et 60,8 ml de K_2HPO_4 (1M)

4. MÉTHODOLOGIE

4.1 Analyse de l'eau souterraine

Afin de vérifier si la composition complexe de l'eau souterraine influence la biodégradation du toluène radiomarké, une analyse sera réalisée sur les paramètres suivants :

- BTEX
- O_2 dissous (mesure approximative puisque la sonde n'entre pas dans un microcosme. Le milieu sera préparé dans un bécher et on tiendra compte du fait que la mesure sera légèrement surévaluée.

4.2 Préparation des microcosmes

- Tamponner l'eau souterraine à 0,05 M avec le tampon phosphate (50 mL de tampon dans 1000 mL d'eau)
- Mettre $2,00 \pm 0,01$ g de tourbe "neuve" égrainée dans 4 microcosmes (SÉRIE 1.)
- Mettre $10,75 \pm 0,01$ g de tourbe âgée de 8 semaines, sans fer, dans 4 microcosmes. (SÉRIE 2. A.B.C.D, T2A, T2B) Voir détail des calculs en annexe.
- Mettre $10,75 \pm 0,01$ g de tourbe âgée de 8 semaines, avec fer, dans 4 microcosmes. (SÉRIE 3. A.B.C.D, T3A, T3B) Même calcul que pour la série 2, le poids du fer n'a pas été considéré.
- Ajouter $80,0 \pm 0,5$ ml d'eau souterraine tamponnée dans chacune des bouteilles sérologiques.
- Ajouter 0,02 % p/v (0,0164 g) de nitrure de sodium (NaN_3) dans les microcosmes témoins.
- Placer les bouteilles à 10 °C (agitées)

- Au moment de partir les microcosmes :
 - Mettre les tubes d'échantillonnage dans les microcosmes et y mettre 1 ml de KOH (1N).
 - Injecter 0,4 µl de toluène radioactif (250 kdpm/µl correspond à 100 kdpm par microcosme) de manière à avoir une concentration totale de 4,35 mg/l dans chaque microcosme.
- Effectuer des contrôles avant pendant et après les injections dans les microcosmes.
- Incuber les microcosmes à 10 °C, à la noirceur et agités (l'aération de l'eau pendant le remplissage des bouteilles ainsi que l'agitation devrait largement suffire à procurer l'oxygène dissous nécessaire à la minéralisation aérobie du toluène radioactif).

4.3 Échantillonnage de microcosmes

Effectuer l'échantillonnage (selon PSO-A10) aux 48 heures.

5. RÉFÉRENCES

6. ANNEXE CALCULS

Afin de déterminer la masse de tourbe "usagée" (mouillée) à mettre dans un microcosme pour que la quantité soit la même dans toutes les séries, un calcul savant (!) a dû être fait...

D'après les essais hydrostatiques (PE-19C), les trois rétentions de la tourbe granulaire sont :

13 % (v/v) de solide;

46 % (v/v) de liquide statique

41 % (v/v) de liquide dynamique.

Ainsi, un cube de tourbe saturé mais drainé d'eau contient 78 % (v/v) d'eau (i.e. $0.46 / (0.46 + 0.13)$).

d'où, $V_{eau} / (V_{eau} + V_{tourbe}) = 0.78$

$\therefore Meau / (Meau + V_{tourbe}) = 0.78$ (car 1 mL d'eau = 1 g)

$Meau / (Meau + 2.00g / 0.81g/mL) = 0.78$ (densité de la tourbe = 0.81 g/cm³, PE-19C)

Ainsi, on trouve la masse d'eau contenue dans 2.00 g de tourbe saturée :

$Meau = 8.75 \text{ g}$

d'où, pour obtenir l'équivalent de 2.00 g de tourbe "sèche" (i.e. sans eau ajoutée, mais telle qu'elle se trouve à la réception), on doit ajouter 10.75 g de tourbe mouillée par microcosme.

7. ANNEXES: MODIFICATIONS

Voir pages suivantes

7. ANNEXES: MODIFICATIONS : TEMOIN EAU SOUTERRAINE (SERIES 4 ET 5)

L'expérience débutée le 18 septembre (PE-19G, version 1) a rapidement démontré que le toluène radiomarqué se minéralisait beaucoup plus rapidement dans l'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières qu'avec l'eau souterraine synthétique ou l'eau du robinet. Afin de s'assurer que ce sont bien les micro-organismes de la tourbe et non ceux présents dans l'eau souterraine qui sont responsables de la minéralisation observée, un témoin "eau souterraine" seule a été testé (série 4). Pour cette série, l'eau souterraine n'a pas été tamponnée. De manière à pouvoir rigoureusement comparer ces résultats avec ceux des séries en présence de tourbe, une cinquième série a été démarrée avec de la tourbe usagée (8 semaines) et de l'eau souterraine du terrain non tamponnée.

7.1 Préparation des microcosmes

- Mettre 20 mL de billes de verre dans le fond de 6 bouteilles sérologiques de 120 mL. Ces billes serviront à maintenir l'éprouvette à KOH dans le microcosme et ainsi faciliter leur échantillonnage (SÉRIE 4, A, B, C, D, TA, TB).
- Mettre $10,75 \pm 0,01$ g de tourbe âgée de 8 semaines (mixte avec et sans fer) dans 5 microcosmes (SÉRIE 5, A, B, C, D, TA, TB).
- Ajouter $80,0 \pm 0,5$ mL d'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières dans chacune des bouteilles sérologiques.
- En effectuant les mêmes manipulations que pour remplir les bouteilles sérologiques, prélever trois échantillons de 40 mL d'eau pour fin d'analyse des concentrations en BTEX (chez le laboratoire PSC). Il s'agit de l'échantillon M1609. Les résultats sont présentés au Tableau 1.
- Ajouter 0,2 % p/v (0,0164 g) de nitrure de sodium (NaN_3) dans les microcosmes témoins. Je dis bien 0,2% (p/v) et non pas 0,02 % (p/v). Il s'agit d'une décision officielle, car le témoin associé à la série 3 du présent protocole a montré autant de minéralisation que les autres. Je ne tiens pas à prendre plus de chance qu'il faut à ce sujet.
- Placer les bouteilles à 10 °C.
- Au moment de partir les microcosmes :
 - Mettre les tubes d'échantillonnage dans les microcosmes et y mettre 1 mL de KOH (1N).
 - Injecter 0,4 µL de toluène radioactif (250 kdpM/µL correspond à 100 kdpM par microcosme) de manière à avoir une concentration totale de 4,35 mg/L dans chaque microcosme.
- Effectuer des contrôles avant pendant et après les injections dans les microcosmes.
- Incuber les microcosmes à 10 °C, à la noirceur et agités (100 rpm).

L'échantillonnage s'est fait de la même façon que pour les autres séries.

Tableau 1 : Concentrations en BTEX dans l'échantillon M1609

Paramètre	Concentration (ug/L)
Benzène	1800
Toluène	750
Ethylbenzène	< 15
Xylènes	2400

ORIGINAL

D.4 PE-19H : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DE TOUS LES BTEX RADIOMARQUÉS SOUS CONDITIONS AÉROBIES À 10°C PAR DE LA TOURBE GRANULAIRE PROVENANT DES BIOFILTRES DU TERRAIN (ÂGÉE DE 14 SEMAINES), AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES



PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL	
Protocole #: 19H	Pages: 3
Version: 1	Date Début: 26 octobre 98
	Date fin: 21 décembre 98

Auteur: Geneviève Martineau

Approuvé par:

Josée Gagnon

Signature:

Josée Gagnon

Date: 98/10/26

Titre : Test de minéralisation en microcosmes de tous les BTEX radiomarqués sous conditions aérobies à 10°C par de la tourbe granulaire provenant des biofiltres du terrain (âgée de 14 semaines), avec de l'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières.

Mots clés: tourbe granulaire, BTEX, minéralisation, radioactivité, microcosmes, micro-organismes, eau souterraine, terrain, dpm.

1. EXPÉRIENCES ANTÉRIEURES

Les expériences reliées aux PE-19G ont permis de démontrer que la tourbe granulaire produite par Premier Tech contient des micro-organismes capables d'effectuer la minéralisation du toluène en présence d'eau souterraine du terrain. et ce. même après 8 semaines passées dans les biofiltres en contact avec d'importantes concentrations de contaminants (BTEX).

2. OBJECTIF(S)

Depuis maintenant 14 semaines, les biofiltres sont en fonction sur un terrain d'une importante compagnie pétrolière à Trois-Rivières. Afin de démontrer que les micro-organismes de la tourbe sont capables de minéraliser les autres BTEX (benzène, éthylbenzène, *o*-, *m*-, *p*-xylènes), de nouvelles séries de microcosmes seront suivies. Une série avec du toluène radiomarqué sera aussi suivie pour faciliter la comparaison des résultats obtenus avec ceux des expériences précédentes.

Toutes les séries contiendront de l'eau souterraine et de la tourbe prélevée dans un des biofiltres se trouvant sur le terrain à Trois-Rivières. De manière à reproduire le plus possible les conditions retrouvées sur le terrain, l'eau souterraine ne sera pas tamponnée. Cependant, d'après les résultats obtenus lors de la réalisation des expériences liées au PE19G, lorsque l'eau souterraine n'est pas tamponnée à l'aide d'un tampon phosphate, la pourcentage total de minéralisation et la vitesse de dégradation sont beaucoup plus faibles que lorsque l'eau est tamponnée. En effet, sans tampon, seulement 47 % de minéralisation du toluène est obtenu après 22 jours et le plateau ne semble pas encore atteint, alors que lorsque la même tourbe est employée, mais avec de l'eau tamponnée, un plateau de 75.5 % de minéralisation du toluène est atteint après environ 20 jours. Deux hypothèses sont émises pour expliquer cette observation : 1) malgré le fait que la tourbe ait été en contact avec de l'eau souterraine pendant 8 semaines, elle n'a pas été complètement lavée de ses acides humiques et une baisse de pH dans les microcosmes est responsable du ralentissement de la minéralisation. 2) le tampon phosphate sert de nutriment aux micro-organismes.

Afin de s'assurer que ce n'est pas une acidification de l'eau qui est responsable du ralentissement de la minéralisation, un témoin pH sera préparé trois jours avant les autres microcosmes (pour vérifier s'il est nécessaire de tamponner l'eau) et sera suivi tout au long des essais de minéralisation.

Pour chaque série de microcosmes quatre réplicats biotiques et deux témoins abiotiques seront préparés.

3. MATERIEL

3.1 Microcosmes

37 bouteilles sérologiques (125 ml). i.e. 6x (4 + 2 témoin NaN_3) + 1 témoin pH

37 valves mininert avec septums (Supelco)

36 tubes d'échantillonnage en verre de 5 ml

Eau souterraine contaminée prélevée sur le terrain (voir contenu en BTEX en annexe section 6)

Tourbe granulaire provenant d'un biofiltre en percolation (plus facile à échantillonner)

solution radioactive de toluène (250 000 dpm/ μL)

solution radioactive de benzène (250 000 dpm/ μL)

solution radioactive de éthylbenzène (250 000 dpm/ μL)

solution radioactive de *o*-xylène (250 000 dpm/ μL)

solution radioactive de *m*-xylène (250 000 dpm/ μL)

solution radioactive de *p*-xylène (250 000 dpm/ μL)

solution de KOH (1N)

seringue de 30 ml (pour le KOH)

seringue de 0.5 injecter les composés radiomarqués

4. METHODOLOGIE

4.1 Préparation des microcosmes

- Mettre 10.75 ± 0.01 g de tourbe égrainée dans tous les microcosmes (le calcul de la masse de tourbe mouillée à ajouter avait été présenté en annexe du PE-19G).
- Ajouter 80.0 ± 0.5 mL d'eau souterraine contaminée dans chacune des bouteilles serologiques (composition approximative présentée au tableau 1 en annexe).
- Ajouter 0.2 % p/v (0.182 g) de nitrure de sodium (NaN_3) dans les microcosmes témoins
- Placer les bouteilles à 10 °C.
- Au moment de partir les microcosmes :
 - Mettre les tubes d'échantillonnage dans les microcosmes et y mettre 1 mL de KOH (1N)
 - Injecter 0.4 μL de solution radioactive dans chaque microcosme (250 kdp/ μL correspond à 100 kdp par microcosme). Ce volume correspond à un ajout de 4.3-4.4 mg/L de contaminant.

dépendant de la densité du BTEX considéré. Cette quantité s'ajoute à la concentration déjà contenue dans l'eau souterraine contaminée (voir annexe).

1. **SÉRIE B** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **benzène radioactif**
2. **SÉRIE T** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **toluène radioactif**
3. **SÉRIE E** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **éthylbenzène radioactif**
4. **SÉRIE o-X** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **ortho-xylène radioactif**
5. **SÉRIE m-X** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **méta-xylène radioactif**
6. **SÉRIE p-X** (1, 2, 3, 4, T1, T2) : **para-xylène radioactif**

- Effectuer des contrôles avant pendant et après les injections dans les microcosmes.
- Incuber les microcosmes à 10 °C, à la noirceur et agités (100 rpm).

La manipulation de l'eau et l'agitation des bouteilles est suffisante à fournir des conditions aérobies dans l'eau des microcosmes. En effet l'expérience du PE-19A (version 3) a démontré que les résultats obtenus sont les mêmes peu importe la méthode d'aération employée. Il est malheureusement impossible de mesurer l'oxygène dissous dans les bouteilles sérologiques, car leur goulot est trop étroit pour y insérer la sonde. De plus, il est inutile de transvider le contenu d'une bouteille dans un autre récipient pour y mesurer l'OD puisqu'il serait instantanément modifié et ne serait plus représentatif du contenu des microcosmes. L'idée d'un témoin d'oxygène dissous a donc été abandonnée.

4.2 Échantillonnage de microcosmes

Effectuer l'échantillonnage (selon PSO-A10) aux 48 heures ou selon les besoins.

Mesurer le pH dans le témoin pH à chaque échantillonnage. Pour se faire, transvider environ 10 mL du contenu du témoin pH dans un vial et prendre la mesure avec la sonde à pH (Orion EL-15). Remettre l'eau employée pour la mesure dans la bouteille du témoin pH.

5. REFERENCES

PE19G. Test de minéralisation en microcosme du ^{14}C -toluène sous conditions aérobies à 10 °C par la tourbe granulaire. AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES Essais effectués entre le 15 septembre et le 4 novembre 1998.

6. ANNEXE EAU SOUTERRAINE CONTAMINÉE

L'eau souterraine employée pour ces essais a été prélevée le 22 octobre 1998. L'analyse de son contenu en BTEX lors de son échantillonnage est présentée au tableau 1.

Tableau 1 : Concentration en BTEX dans l'échantillon W2210


Paramètre	Concentration (µg/L)
Benzène	3500
Toluène	2100
Ethylbenzène	500
Xylènes	4300

Il se peut qu'une fraction de contaminant ait été volatilisée durant le remplissage des bouteilles sérologiques. Cependant, d'après les analyses effectuées lors des essais liés au PE19G, il semble que moins de 50 % des BTEX sont perdus durant le transvasage.

D.5 PE-19I : CARACTÉRISATION HYDRODYNAMIQUE DE 4 BIOFILTRIS PILOTES À BASE DE TOURBE GRANULAIRE APRÈS PLUSIEURS MOIS DE FONCTIONNEMENT SUR UN SITE DE TROIS-RIVIÈRES



PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL	
Protocole #: 19I	Pages: 5
Version: 3	Date début: novembre 1998
	Date fin

Auteur: Geneviève Martineau	Signature:
Approuvé par:	
Réjean Samson	Date: 30 / 11 / 98

<p>Titre : Caractérisation hydrodynamique de 4 biofiltres pilotes à base de tourbe granulaire APRES PLUSIEURS MOIS DE FONCTIONNEMENT sur un site de Trois-Rivières. (Traceur = Tritium)</p> <p>Mots-clés: tourbe granulaire, biofiltre pilote, temps de résidence, écoulement, nombre de Peclet, distribution des temps de séjour (DTS), radioactivité.</p>

1. OBJECTIF(S)

Les essais reliés au PE 19C (version 3) ont permis de caractériser l'écoulement à travers deux types de biofiltres pilotes de 200 L (mode percolation et mode saturé à courant ascendant). Lors de ces essais, une distribution des temps de séjour au sein des biofiltres a été obtenue pour différents taux de charge hydraulique et pour différents systèmes de distribution en mode percolation. Durant ces essais, la tourbe granulaire composant le milieu filtrant était neuve.

Depuis maintenant quatre mois, quatre biofiltres pilotes sont installés sur un site à Trois-Rivières. L'eau souterraine qui les alimente en continu est fortement contaminée à l'essence (BTEX et C₁₀-C₂₀ particulièrement) et contient d'importantes quantités de fer et de calcium. Pour augmenter l'oxygène dissous dans l'eau et ainsi favoriser la biodégradation des BTEX, un aérateur a été placé dans un réservoir tampon. Cette installation a eu deux effets majeurs : 1) production importante de biomasse dans le réservoir tampon et la tuyauterie et 2) production d'oxydes de fer sous forme solide. La biomasse, mais surtout le fer ont été alimentés aux biofiltres et retenus dans le milieu filtrant. Il s'agit maintenant de voir comment ces conditions de terrain ont pu influencer les propriétés hydrodynamiques de la tourbe granulaire et en quoi le type d'écoulement au sein des biofiltres a été modifié.

Le but de cette expérience est donc de déterminer, par un essai de DTS, le type d'écoulement dans les biofiltres pilotes après quatre mois de filtration d'eau souterraine. La comparaison avec les DTS obtenus lorsque la tourbe granulaire était neuve permettra de caractériser l'effet du vieillissement sur l'hydrodynamique du système. Tout comme pour le PE19 C (Version 3), les paramètres obtenus pourront servir à la conception et à la mise à l'échelle de biofiltres industriels. De plus, la connaissance de la qualité de la distribution et de l'écoulement dans les unités de biofiltration permettra de mieux comprendre les résultats de dégradation et l'efficacité de traitement obtenus.

Quatre biofiltres seront testés, soient les deux configurations en duplicata.

2. PROPRIÉTÉS HYDRODYNAMIQUES (ESSAI DE DTS)

Les propriétés hydrodynamiques des biofiltres sont évaluées lorsqu'il y a écoulement de fluide (d'eau dans le cas présent) au travers du lit. Comme pour les essais précédents, les DTS serviront à déterminer les paramètres du modèle de dispersion et, dans la mesure du possible, à les comparer aux données trouvées dans la littérature pour des systèmes semblables.

2.1 Matériel et méthodes

Les quatre biofiltres sont déjà installés sur le site et alimentés en continu à l'aide d'une pompe centrifuge. Ce type de pompe a cependant le désavantage de fournir un débit qui est fonction de la perte de charge dans les tuyaux. Étant donné que la perte de charge principale dans les tuyaux d'amenée d'eau est due aux dépôts de biomasse et de solides en suspension sur les parois, il est très difficile de contrôler le débit alimenté aux biofiltres. Pour cette raison, les essais hydrodynamiques seront réalisés avec deux pompes péristaltiques.

2.1.1 Montage pour alimentation des biofiltres

2 pompes péristaltiques à deux têtes Easy-Load (Masterflex)

Tubing Norprene 6404 de Masterflex (ID=5/16") pour les têtes de pompes

Tubing PVC pour le reste

Échantillonneurs faits à partir de vannes mininert à l'entrée et à la sortie de chacun des biofiltres

- Installer les pompes péristaltiques sur le montage;
- Installer les échantillonneurs à l'entrée et à la sortie de chacun des biofiltres à être testé;
- Fixer un taux de charge hydraulique de $10 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{j}$ (soit 1.833 L/min i.e. $1 \text{ m}^3 \text{ s}$ pour 2 L). Éventuellement, il sera possible de tester d'autres débits.
- Attendre une période équivalente à au moins trois temps de résidence hydraulique (3 TRH), i.e. 120 minutes (voir calculs du temps de résidence théorique en annexe).

2.1.2 Injection et échantillonnage du traceur

Eau tritiée ($^3\text{H}_2\text{O}$). Préparer une solution radioactive permettant d'avoir environ $3.52 \times 10^7 \text{ dpm}$ (soit $16 \mu\text{Ci}$) par injection. Les calculs détaillés sont en annexe.

Seringue $250 \mu\text{L}$ pour injection de la solution de tritium radioactive

2 seringues 5 mL pour échantillonnage à la sortie des biofiltres

Vials à scintillation pour y mettre les échantillons prélevés (pré-identifiés)

Eau distillée (2 L)

2 pots Mason pour l'eau propre et l'eau de rinçage (radioactive)

Ruban adhésif

Papier absorbant

Chariot ou table (pour déposer le matériel durant l'essai de traceur)

Lunettes de laboratoire, sarraus, gants de laboratoire, masques à gaz (pour les vapeurs d'essence)

- Temps total d'échantillonnage : 160 minutes, ce qui correspond à 4 TRH théorique (voir calcul en annexe).**

Heure	Temps total (min)	P1	S2	S1	P2
	0				
	20	40 /2min			
	40	40			
	60		40 /2min		
	80	/5min	40		
	100	100			
	120		/5min		
	140		100		
	160				
	180				
	200				
	220			40 /2min	
	240			40	
	260				40 /2min
	280			/5min	40
	300			100	
	320				/5min
	340				
	360				
	380				
	400				

2.1.3 Comptage des échantillons

Liquide à scintillation

Compteur à scintillation

Une fois de retour au laboratoire :

- Ajouter 10 mL de liquide à scintillation dans chacun des vials.
- Les échantillons prélevés sont lus par le compteur à scintillation Wallac (Protocole 2, exclusivement pour l'isotope).

3. PROPRIÉTÉS HYDROSTATIQUES

Les propriétés hydrostatiques ont été décrites dans le PE 19C (version 3). Lorsque les essais de terrain seront terminés, une partie du milieu filtrant usagé pourra être séché et employé pour réaliser un essai hydrostatique à petite échelle.

4. RÉFÉRENCES

PE 19C (version 3)

5. ANNEXE PRÉCAUTIONS

- Mettre tout le matériel radioactif dans une glacière étanche. Cette dernière sera décontaminée après avoir été vidée.
- Récupérer l'eau de rinçage des seringues d'injection et d'échantillonnage et la ramener au laboratoire pour comptage.
- Porter un sarrau par dessus le manteau lors des essais de traceur.

6. ANNEXE CALCULS

6.1 Calcul du temps de résidence théorique

Calcul du temps de résidence hydraulique (TRH) théorique à quoi le taux de charge correspond :

$$t_m = \tau = V_{\text{eau libre}} / Q = V_{\text{total}} \cdot \text{porosité} / Q$$

pour $Q = 10 \text{ m}^3/\text{m}^2 \cdot \text{j}$, $\text{TRH} = 150 \text{ L} \cdot 0.45 / 1.833 \text{ L/min} = 40 \text{ min (approx.)}$

Ce calcul ne tient pas compte du changement de porosité dû au vieillissement du milieu filtrant. Cependant, le colmatage de la tourbe aura eu pour effet de diminuer sa porosité et donc le temps de résidence théorique. En gardant la valeur de la porosité de la tourbe neuve, on surestime le temps de résidence et on s'assure un temps d'échantillonnage suffisant pour mesurer toute la sortie du traceur.

6.2 Calcul de la quantité de traceur nécessaire

Lors des essais de traceur réalisés en laboratoire avec de la tourbe neuve (PE19 C, version 3), il avait été déterminé qu'il fallait injecter $16 \mu\text{Ci} / 250 \mu\text{L}$ pour obtenir une courbe de DTS. Par ailleurs, le compteur à scintillation a une efficacité inférieure à 50 % sur la lecture du nombre de désintégrations par minute (CPM/DPM). Comme ce qui importe c'est la lecture fournie par le compteur et non l'activité réelle, la quantité d'eau tritiée a été augmentée à $40 \mu\text{Ci}/\text{injection}$.

En tout, $3\,000 \mu\text{L}$ de solution chaude sera préparée. ($40 \mu\text{Ci} / 250 \mu\text{L} * 3\,000 \mu\text{L} = 480 \mu\text{Ci}$).

Théoriquement, selon les spécifications du produit, la solution mère a une activité de $25 \mu\text{Ci}/\mu\text{L}$. Ainsi, la solution à préparer doit se composer de :

20 μL de solution mère ($25 \mu\text{Ci}/\mu\text{L}$)

+ 2 980 μL d'eau distillée

3 000 μL de solution de traceur

7. ANNEXES: MODIFICATIONS

D.6 PE-19J : DÉTERMINATION DE LA SOURCE DE MICRO-ORGANISMES RESPONSABLES DE LA MINÉRALISATION DU ^{14}C -TOLUÈNE : COMPTES MICROBIENS ET ESSAIS DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES DE 500 mL PAR LA TOURBE GRANULAIRE NEUVE ET USAGÉE ET PAR L'EAU SOUTERRAINE DE TROIS-RIVIÈRES



PROTOCOLE EXPERIMENTAL	
Protocole #: 19J	Pages: 8
Version: 2	Date début: 25 février 1999
	Date fin : 25 mars 1999

Auteur: Geneviève Martineau

Approuvé par:

Louise Deschênes

Signature:

Date: ____ / ____ / ____

Titre : Détermination de la source de micro-organismes responsables de la minéralisation du ^{14}C -toluène : comptes microbiens et essais de minéralisation en microcosmes de 500 mL par la tourbe granulaire neuve et usagée et par l'eau souterraine de Trois-Rivières avant et après aération (STÉRILISATION PAR AUTOCLAVAGE).

Mots clés: tourbe granulaire, toluène, minéralisation, radioactivité, macrocosmes, micro-organismes, eau souterraine, terrain, dpm.

1. OBJECTIF(S)

Pendant plus de 20 semaines, les biofiltres ont été fonction sur un terrain d'une importante compagnie pétrolière à Trois-Rivières. Les expériences antérieures (PE-19G et H) ont permis de démontrer que la tourbe granulaire ayant servi à la biofiltration (pendant 14 semaines) d'eau souterraine contaminée contient des micro-organismes capables d'effectuer la minéralisation de tous les BTEX radiomarqués. Afin de déterminer dans quelle mesure la minéralisation observée précédemment est due aux micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire ou à une bioaugmentation par les micro-organismes de l'eau souterraine, différentes séries de microcosmes seront suivies. Le but de cette expérience est donc de démontrer hors de tout doute d'où proviennent les micro-organismes qui sont responsables de la dégradation des BTEX.

Le PE19J version 1 devait répondre à cet objectif avec des microcosmes de 500 mL dans lesquels la tourbe et ou l'eau souterraine avaient été stérilisés par irradiation. Cependant, après 30 jours de suivi, certains témoins présentaient plus de 50 % de minéralisation, rendant les résultats inutilisables. Pour cette raison, les essais sont repris, mais en stérilisant par autoclavage cette fois.

2. PLAN EXPERIMENTAL

Afin de déterminer d'où proviennent les micro-organismes responsables de la minéralisation des BTEX, les différentes sources possibles de dégradeurs seront caractérisées.

Les paramètres de l'étude sont :

1. la **tourbe granulaire neuve** ou les *micro-organismes indigènes de la tourbe granulaire*.
2. la **tourbe granulaire acclimatée**, tourbe se trouvant dans les biofiltres sur le terrain et ayant servi à la biofiltration d'eau souterraine contaminée et préalablement aérée. Cette tourbe a donc accumulé des dépôts minéraux et métalliques (principalement de l'oxyde de fer) et des matières en suspension, telles des

agrégats de biomasse qui se développent dans le bassin d'aération et dans les tuyaux d'alimentation. Il s'agit donc des *micro-organismes indigènes acclimatés et bioaugmentés*.

3. l'eau souterraine du puits ou les *micro-organismes indigènes de l'aquifère contaminé*.
4. l'eau souterraine du bassin d'aération ou les *micro-organismes indigènes de l'aquifère, stimulés par l'aération*

2.2 Minéralisation du ^{14}C -*p*-xylène en microcosmes de 500 mL

Des microcosmes de 500 mL seront employés de manière à ce que des cubes de tourbe entiers puissent y entrer et ainsi mieux représenter le contact réel eau/micro-organismes/tourbe retrouvé dans les biofiltres pilotes. De plus, les bouteilles employées sont en verre ambré, ce qui minimise les pertes de contaminants par photo-dégradation.

Le *p*-xylène a été choisi comme contaminant étudié. Ce choix fait suite aux observations notées lors de la comparaison des résultats de tourbe acclimatée avec ceux d'Annick (Martineau et al., 1999, San Diego). En effet, les isomères du xylène n'étaient pas minéralisés par la tourbe granulaire neuve (ou les courbes présentaient d'importants temps de latence. Ainsi, pour mieux percevoir une acclimatation des micro-organismes, le choix du contaminant s'est donc arrêté au *p*-xylène.

Pour départager l'effet de toutes les flores microbiennes présentes sur la minéralisation du toluène radiomarké, plusieurs séries de microcosmes seront suivies. Des contrôles supplémentaires seront ajoutés pour suivre le pH au sein des microcosmes.

Série 7 (7A, 7B, 7C, T7) Effet de la tourbe, avant acclimatation

- Tourbe neuve, lavée
- Eau souterraine du puits (avant aération) STÉRILE
- Témoin tourbe neuve stérile + eau souterraine du puits stérile
- Contrôle pH

Série 8 (8A, 8B, 8C, T8) Effet de l'eau souterraine du puits

- Tourbe de terrain STÉRILE
- Eau souterraine du puits (avant aération)
- Témoin tourbe stérile + eau souterraine du puits stérile

Série 9 (9A, 9B, 9C, T9) Effet de l'eau souterraine du bassin d'aération

- Tourbe de terrain STÉRILE
- Eau souterraine du bassin d'aération (avec agrégats de biomasse)
- Témoin tourbe stérile + eau souterraine aérée stérile

Série 10 (10A, 10B, 10C, T10) Effet de la tourbe acclimatée, telle qu'elle se trouve dans les biofiltres

- Tourbe de terrain
- Eau souterraine du puits (avant aération) STÉRILE
- Témoin tourbe stérile + eau souterraine du puits stérile

Le Tableau 1 résume les contenu des différents microcosmes.

Tableau 1 : Plan expérimental des essais en microcosmes de 500 mL

	Eau sout. du puits		Eau sout. aérée		Tourbe acclimatée		Tourbe neuve		NaN3
	Stérile	Non sté	Stérile	Non sté	Stérile	Non sté	Stérile	Non sté	
✓ 7 A à C	3X							3X	
✓ T7	X						X		
✓ pH7	X							X	
✓ 8 A à C		3X			3X				
✓ T8	X				X				
✓ 9 A à C				3X	3X				
✓ T9			X		X				
✓ 10 A à C	3X					3X			
✓ T10	X				X				

3. MATÉRIEL

Tous les essais seront réalisés sur les milieux suivants :

- ✓ Eau souterraine du puits
- ✓ Eau souterraine aérée (provenant du bassin d'aération)
- (L'eau souterraine du puits et l'eau souterraine du bassin d'aération ont été prélevées le 15 décembre 1998)
- ✓ Tourbe granulaire neuve ayant été lavée de ses acides humiques
- ✓ Tourbe granulaire acclimatée (provenant des biofiltres sur le terrain)

3.3 Microcosmes

- ✓ 17 bouteilles ambrées (500 mL)
- ✓ 17 valves Mininert avec septums (Supelco)
- ✓ 17 couvercles doublés de Téflon et percés pour installer les vannes
- ✓ 16 supports métalliques pour tenir les tubes d'échantillonnage droits
- ✓ 16 tubes d'échantillonnage en verre de 10 mL (tubes de spectromètres avec filets pour bouchons : c'est grâce aux filets que le support métallique retient les tubes)
- ✓ 7 L d'eau souterraine du puits contaminée prélevée sur le terrain
- ✓ 5 L d'eau souterraine du bassin d'aération prélevée sur le terrain
- En estimant à 15 le nombre de cubes par microcosmes :
- ✓ Environ 350 cubes de tourbe granulaire provenant d'un biofiltre en percolation (plus facile à échantillonner)

- ✓ Environ 75 cubes de tourbe neuve préalablement lavée
- ✓ 75 µl desolution radioactive de *p*-xylène (67 kdpµ/µl)
- ✓ solution de KOH (1N)
- ✓ seringue de 30 mL (pour le KOH)
- ✓ seringue de 10 µl pour injecter le *p*-xylène radiomarké

4. MÉTHODOLOGIE

- Dans une colonne de 10 cm de diamètre, laver la tourbe neuve en mode saturé à courant ascendant avec de l'eau distillée pendant 2 semaines.

Selon le contenu prévu pour chaque série de microcosmes (Tableau 1) :

- Mettre 150.0 ± 0.5 g (environ 15 cubes entiers) de tourbe humide (tourbe acclimatée ou neuve)
- Autoclaver pendant **35 minutes** les microcosmes (contenant la tourbe) qui doivent être stériles.
- Autoclaver pendant **35 minutes** l'eau souterraine devant être stérile
- Ajouter 250 ± 1 mL d'eau souterraine dans chacune des bouteilles.
- Pour les bouteilles contenant de l'eau souterraine aérée, mettre 200 mL d'eau prélevée le 15 décembre et compléter avec 50 ml de boue provenant de l'aérateur (datant du 29 octobre 1998 et conservée à 4°C depuis). De cette manière, il sera certain que la flore aérobie retrouvée dans le système dans les heures de gloire de l'aérateur sera présente dans les microcosmes. En effet, l'eau prélevée dans l'aérateur le 15 décembre n'avait plus du tout le même aspect du fait que l'aération avait été coupée...
- Placer les bouteilles à 10 °C.
- Au moment de partir les microcosmes :
 - Mettre 1 mL de KOH (1N) dans les tubes d'échantillonnage (malgré le fait que les quantités de tourbe, d'eau souterraine et de contaminant soient plus importantes, il n'est pas nécessaire d'augmenter le volume de KOH étant donné sa très grande capacité de "trappage" (Manon))
 - Injecter 1.5 µL de *p*-xylène radioactif dans chaque microcosme (67 kdpµ/µL correspond à 100 kdpµ par microcosme). Ce volume correspond à un ajout de 4.3 mg/L. Cette quantité s'ajoute à la concentration déjà contenue dans l'eau souterraine contaminée.
- Effectuer des contrôles avant, pendant et après les injections dans les microcosmes.
- Incuber les microcosmes à 10 °C, à la noirceur et agités (100 rpm).
- Effectuer l'échantillonnage (selon PSO-A10) aux 48 heures ou selon les besoins.
- Mesurer le pH dans le témoin pH à chaque échantillonnage.

5. RÉFÉRENCES

PE19G. "Test de minéralisation en microcosme du ^{14}C -toluène sous conditions aérobies à 10 °C par la

tourbe granulaire. AVEC DE L'EAU SOUTERRAINE DU TERRAIN DE TROIS-RIVIÈRES ". Essais effectués entre le 15 septembre et le 4 novembre 1998.

PE19H. " Test de minéralisation en microcosme de tous les BTEX radiomarqués sous conditions aérobies à 10 °C par la tourbe granulaire. avec de l'eau souterraine du terrain de Trois-Rivières. " Essais effectués entre le 26 octobre et décembre 1998.

PSO A12. " Dénombrement total de micro-organismes hétérotrophes par la méthode du nombre le plus probables. ". Rédigé par Pascale Picard et approuvé par Sandra Estrela (1997).

PSO A7. " Détermination du taux d'humidité d'un sol "

Martineau, G., Têtreault, A., Gagnon, J., Deschênes, L. et Samson, R. (1999). "Development of a biofiltration system for *in situ* remediation of BTEX-impacted groundwater" Compte-rendu de conférence, 5th annual Symposium on Soil Contamination, San Diego.

D.7 PSO-A10 : TEST DE MINÉRALISATION EN MICROCOSMES



PROTOCOLE STANDARD D'OPÉRATION	
Protocole#:A10	Pages:9
Version:2	Date:1-avr-97
	Signatures:
Auteurs:Sandra Estrela	<i>[Signature]</i>
Katia Santini	<i>[Signature]</i>
Approuvé par:	Date: 97-07-03
Titre: Test de minéralisation en microcosmes	
Mots clés: Minéralisation, radioactivité, microcosmes, micro-organismes, dpm	

1.00 Domaine d'application

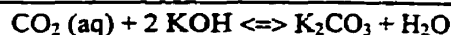
Ce protocole s'applique aux sols et à toute autre substance susceptible de posséder un potentiel de biodégradation.

2.00 Principes de la méthode

La biodégradation ultime d'un contaminant est appelée la **minéralisation**. Elle implique que le contaminant est transformé complètement en CO₂.

Pour déterminer la biodégradabilité des polluants dans les sols ou toute autre matrice, il s'agit de mettre certains composés radioactifs témoins représentatifs du type de pollution dans un microcosme contenant la matrice d'intérêt et de vérifier s'il y a minéralisation de la part des micro-organismes présents (Samson et al., 1991; Millette et al., 1995, Otte et al., 1994). Un poids de 20 g de sol (eau souterraine, compost ou autre) est déposé dans une bouteille sérologique de 120 ml. La solution de polluant marqué au carbone-14 est utilisée pour obtenir dans les microcosmes une activité totale de 100 000 dpm (désintégrations/minute). Chacun des microcosmes est muni d'une trappe à CO₂ constituée de 1 ml de KOH 1 N déposé dans un tube de verre de 5 ml à l'intérieur de la bouteille. Le microcosme est scellé et incubé sans agitation à la température mesurée dans la matrice au moment de l'échantillonnage (ex.: pour l'eau souterraine, le microcosme est incubé à 10 °C). Périodiquement, le KOH contenant le

$[^{14}\text{C}]\text{CO}_2$ est échantillonné et déposé dans un vial pour le comptage de la radioactivité dans un compteur à scintillation alors qu'il est remplacé par une solution fraîche. La minéralisation du polluant radiomarqué est ainsi mesurée par la production de $[^{14}\text{C}]\text{CO}_2$ (issue de la minéralisation du polluant) qui a réagi avec la solution de KOH selon la réaction chimique suivante:



La radioactivité enregistrée représente donc ce qui a été minéralisé par les micro-organismes. Par ailleurs, afin de tenir compte des pertes abiotiques des composés radioactifs, des témoins empoisonnés contenant $\frac{0,02\text{g}}{0,02\text{g}}$ (p/p) d'azoture de sodium sont préparés. La figure 2.1 résume le principe de la minéralisation en microcosme.

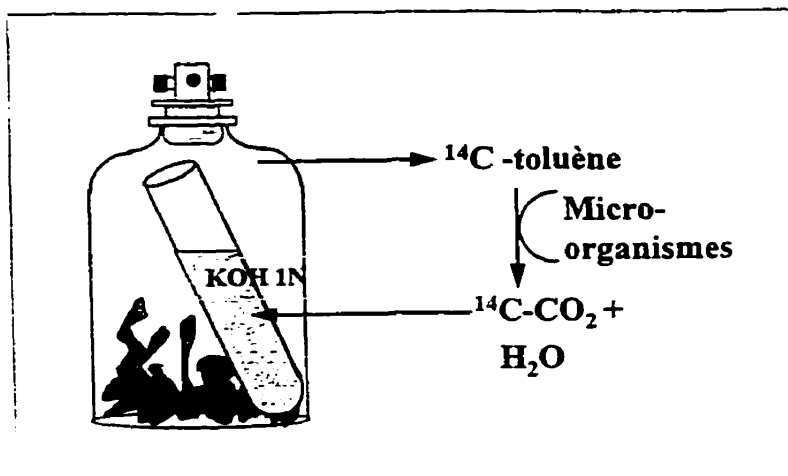


Figure 2.1: Principe de minéralisation en microcosme (exemple donné pour la minéralisation du toluène).

3.00 Matériel

- Compteur à scintillation Wallac 1409 avec unité de disquette 3.5 et imprimante Epson LX300 (Fisher Scientific);
- Cocktail à scintillation OptiPhase Hisafe 3 (Fisher Scientific);
- Bouteilles sérologiques 120 ml (Fisher Scientific);
- Valves mininert avec septums (pour les composés volatils) (Supelco);
- ou
- Septums étanches avec anneaux métalliques (Fisher Scientific);
- Tubes en verre de 5 ml (diamètre 10 ou 12 mm) (Fisher Scientific);
- KOH (Anachemia);
- Vials à scintillation en verre de 20 ml avec bouchons (Fisher Scientific);
- Support pour vials à scintillation (Fisher Scientific);

ORIGINAL

- Produit radioactif (Sigma);
- Azoture de sodium (NaN_3) (Anachemia);
- Balance analytique Mettler Toledo AB204 ou PB302 (précision de ± 0.002 g);
- Papier absorbant;
- Resserreur de bouchon « crimper »;
- Seringues en verre Gastight de 1, 10, 50, 100, 250 et 1000 μl ;
- Seringues en plastique de 30 ml et 5 ml;
- Aiguille en acier inoxydable de 6 '';
- Vial ambré de 1.8 ml avec bouchon contenant un septum.

4.00 Mode Opérateur

4.10 Préparation de la solution radioactive: généralités

Avant même de débiter le test de minéralisation en microcosmes, il faut préparer la solution radioactive qui servira de substrat aux micro-organismes.

Deux cas peuvent survenir:

- 1) Le polluant radioactif en question vient d'être livré;
- 2) Une solution mère du polluant radioactif existe déjà.

Dans le premier cas, il faut consulter le PSO portant sur la manipulation de produits radioactifs spécifiques d'intérêt (PSO G4).

Dans le second cas, il faut procéder à une dilution de la solution mère afin d'effectuer une solution de travail (ou solution fille) diluée qui servira à l'expérience (voir les étapes préliminaires 4.20). Les dilutions s'effectuent toujours avec le solvant dans lequel arrive le produit radiomarké (ex.: le PCP vient dans le toluène, il faut donc le diluer avec ce solvant). En cas de doute sur le solvant approprié, consulter le certificat d'analyse fourni par le fabricant.

Noter bien qu'il faut s'inscrire dans le manuel de radioprotection avant même de procéder à l'expérience de même qu'au manuel de l'inventaire pour les produits radioactifs. Il est recommandé d'être assisté par une personne ayant suivi le cours de radioprotection lors de vos premières manipulations. Toujours noter la date, le nom, le produit radioactif et la quantité de dpm utilisée tel que décrit dans les documents de l'annexe.

4.20 Étapes préliminaires

- 1- Prévoir le nombre d'échantillons de l'expérience et le nombre de fois que l'on vérifiera la solution radioactive avec des **contrôles** (avant l'expérience et pendant l'ajout dans les microcosmes afin de vérifier la stabilité de la solution et la reproductibilité des manipulations, environ à tous les 6 microcosmes);
- 2- Effectuer une estimation de la quantité de dpm requise pour l'expérience. En général, une injection spontanée de 100 000 dpm / microcosme est choisie (ex.: pour 10 microcosmes, il faut une solution mère ayant au moins 1 000 000 de dpm);

ORIGINAL

3- Calculer le volume de solution mère requis pour effectuer la solution de travail.

4.21 Exemple pour les calculs préliminaires

exemple:

Solution mère radioactive (C_1) = 204 000 dpm / μL (inscrit dans l'inventaire ou évalué à l'aide du compteur à scintillation)

Solution fille radioactive (C_2) = 100 000 dpm / 10 μL •

$$= 10\,000 \text{ dpm} / \mu\text{L}$$

Volume total requis (V_2) = 150 microcosmes avec injection de 10 μL de solution radioactive à 100 000 dpm

$$= 1\,500 \mu\text{L}$$

Volume de la solution mère requis = ?

$$C_1 V_1 = C_2 V_2$$

$$V_1 = \frac{C_2 V_2}{C_1} = \frac{10\,000 \text{ dpm} / \mu\text{L} \cdot 1\,500 \mu\text{L}}{204\,000 \text{ dpm} / \mu\text{L}} = 73.5 \mu\text{L}$$

$$\begin{aligned} \text{Volume de solvant nécessaire} &= 1\,500 \mu\text{L} - 73.5 \mu\text{L} \\ &= 1\,426.5 \mu\text{L} \end{aligned}$$

→ 1427 μL de toluène + 73 μL de solution stock $^{14}\text{C-PCP}$ = 1500 μL d'une solution diluée à 100 000 dpm / 10 μL

* Il est courant d'utiliser une injection instantannée de 10 μL de solution radioactive contenant 100 000 dpm par microcosme. Le 10 μL est issu d'un choix personnel basé sur la facilité de manipulation et la reproductibilité de l'injection. Une quantité entre 5 et 100 μL peut quand même être utilisée.

4.30 Préparation de la solution radioactive de travail (solution fille)

Tous les produits radiomarqués sont entreposés dans la boîte en plexiglas dans le réfrigérateur à 4 °C.

- 1- Porter en tout temps sarrau et deux paires de gants + lunettes;
- 2- Réserver la hotte radioactive pour la période de travail;
- 3- Installer un papier absorbant dans la hotte utilisée pour les manipulations radioactives (hotte A) et fixer le papier à l'aide de ruban gommé;

ORIGINAL

- 4- Aller chercher le produit radioactif à 4 ° C et déposer la boîte qui le contient sur le papier absorbant dans la hotte, baisser la vitre de la hotte;
- 5- Préparer un vial en verre de 20 ml avec le solvant propre avec lequel on veut diluer un certain volume de la solution mère. Prévoir un second vial dans lequel sera déposé le solvant-déchet (solvant utilisé pour le rinçage des seringues);
- 6- Déposer la quantité de solvant, préalablement calculée à l'étape 4.20.3, dans un vial ambré en verre de 1.8 ml à l'aide d'une seringue en verre *Gastight* préalablement rincée trois fois au solvant propre et mettre le bouchon en teflon;
- 7- Prendre la quantité nécessaire de produit radioactif à l'aide d'une seringue en verre (se trouvant dans la hotte A) rincée trois fois au solvant propre et déposer dans le même vial ambré de 1.8 ml. Boucher le vial de 1.8 ml avec un bouchon à couverture de teflon;
- 8- Bien agiter;
- 9- Vérifier le nombre de dpm / μL de cette solution de travail en injectant 1 μL (quantité minimale) dans un vial à scintillation contenant 10 mL de cocktail à scintillation puis en le faisant compter au compteur à l'aide du protocole EASY COUNT (00) pour une lecture de 1 min. par vial;
- 10-Lire la colonne DPM (désintégrations par minute) sur la feuille sortant de l'imprimante;
- 11-Identifier la bouteille en indiquant combien de dpm / μL elle contient et indiquer la quantité de produit radioactif utilisée dans la feuille d'inventaire (voir ex. en Annexe).

4.30 Préparation des microsomes

- 1- Préparer d'abord une feuille de travail qui tiendra compte des ajouts à effectuer aux microcosmes (voir modèle suivant);

N°	description	température	jour 0	sol (g)	eau (ml)	NaN ₃ (g)
1	SOL1	20°C	970101, 10:00	20	-	
2	SOL2	20°C	970101, 10:00	20	-	
3	TEMOIN	20°C	970101, 10:00	20	-	0.04 0,004
4	EAU1	10°C	970101, 10:00	-	20	
5	EAU2	10°C	970101, 10:00	-	20	
6	TEMOIN	10°C	970101, 10:00	-	20	0.04 0,004

Tableau 4.1 : Feuille de travail pour la préparation des microcosmes

- 2- Réserver la hotte radioactive pour la période de travail;
- 3- Peser 20 g de sol ou 20 mL d'eau selon le cas dans des bouteilles sérologiques bien identifiées (120 ml). Effectuer tout autre ajout à ce moment selon les besoins de l'expérience (ex: polluant non marqué, MSM¹, glucose, conditions anoxiques: purger à l'azote; dénitrifiantes: NaNO₃, sulfato-réductrices: NaSO₄,

¹ voir PSO pour connaître la composition de la solution de MSM

méthanogéniques...).

Il est recommandé d'ajouter une quantité connue de polluant non radiomarké (« froid ») afin que le substrat ne devienne pas limitant pour la flore indigène des micro-organismes. Il faudra par ailleurs s'assurer que la quantité ajoutée n'est pas toxique pour les micro-organismes; — 0.5049

- 4- Ajouter l'azoture de sodium (NaN_3 ~~0.04 g~~ ^{0.03 g}) soit ~~0.04~~ ^{0.03} g, dans les microcosmes témoins à la toute fin. Ceux-ci constitueront les témoins abiotiques;
- 5- Placer le tube de verre de 5 ml contenant 1 ml de KOH 1N à l'intérieur du microcosme:

À ce stade, porter en tout temps sarrau et deux paires de gants et lunettes. Installer un papier absorbant dans la hotte utilisée pour les manipulations radioactives (hotte A). Fixer le papier à l'aide de ruban gommé.

- 6- Installer les microcosmes sur un chariot recouvert de papier absorbant près de la hotte de travail;
- 7- Injecter la quantité de solution radioactive de travail requise (généralement 10 μ L) dans le microsome à l'aide d'une seringue en verre *Gastight* préalablement rincée trois fois au solvant propre. **Attention: ne pas injecter dans le tube à KOH;**
- 8- Effectuer des contrôles (environ à chaque 6 microcosmes) en injectant 10 μ l de la solution radioactive de travail dans un vial à scintillation contenant 10 ml de cocktail.
- 9- Sceller le microcosme avec la valve mininert contenant un septum (produit radioactif volatil) ou bien avec un septum recouvert de teflon et son anneau métallique à l'aide du serre-bouchon et passer au microcosme suivant;
- 10- Entreposer les microcosmes à la température voulue, à la noirceur si nécessaire (cabinet gris d'entreposage des microcosmes radioactifs).
- 11- Placer tous les vials contenant les contrôles dans le support à vials et ajouter une languette identifiée PROTOCOLE 1 sur le côté du support marqué d'un point rouge;
- 12- Faire compter dans le compteur à scintillation liquide en plaçant le support point rouge vers la droite et en choisissant les commandes START (2x) puis SELECT;
- 13- Bien indiquer les échantillons sur la feuille d'inventaire du compteur en notant aussi le numéro de fichier (voir ex. en Annexe).
- 14- Lire la colonne DPM (désintégrations par minute) sur la feuille sortant de l'imprimante;

4.40 Échantillonnage des microsomes

L'échantillonnage des microcosmes s'effectue de façon périodique pouvant aller d'un échantillonnage aux heures à un échantillonnage hebdomadaire dépendamment du polluant en question de même que de la matrice. Il est recommandé de suivre de façon continue la cinétique de dégradation du polluant afin d'arrêter l'expérience après l'obtention de la phase dite « plateau » (voir graphique 5.1.1).

- 1- Préparer une solution de KOH 1N (56.11 g/l d'eau distillée):
- 2- Porter en tout temps sarrau et deux paires de gants + lunettes;
- 3- Réserver la hotte radioactive pour la période de travail:

ORIGINAL

- 4- Installer un papier absorbant dans la hotte utilisée pour les manipulations radioactives (hotte A) et fixer le papier à l'aide de ruban gommé;
- 5- Installer dans la hotte les deux béciers identifiés EAU DE RINÇAGE et EAU REJETÉE. Remplir le premier avec de l'eau distillée (utiliser l'évier réservé pour la radioactivité);
- 6- Retirer les microcosmes du lieu d'entreposage et installer les microcosmes sur un chariot recouvert de papier absorbant près de la hotte de travail;
- 7- Numéroté tous les bouchons avec le numéro de microcosme, vos initiales, le numéro d'échantillonnage et la date;
- 8- Placer les vials à scintillation dans le support noir en commençant par le côté opposé au point rouge sur le support;
- 9- Amener le support contenant les vials de même que les bouchons dans la hotte;
- 10- Remplir la seringue en plastique de 30 cc avec la solution de KOH 1N et la déposer dans la hotte après avoir retiré l'aiguille;
- 11- Effectuer un blanc en déposant 10 ml du cocktail à scintillation (à l'aide du distributeur) dans le premier vial de 20 ml et en y ajoutant 2 ml de KOH 1N à l'aide de la seringue en plastique;
- 12- Effectuer l'échantillonnage du premier microcosme: prélever la solution de KOH en introduisant une aiguille en acier inoxydable de 6" connectée à une seringue de 5 ml dans le tube se trouvant à l'intérieur du microcosme;
- 13- Vider la trappe à l'aide de la seringue;
- 14- Retirer la seringue en laissant l'aiguille dans le microcosme;
- 15- Mettre le contenu de la seringue dans un vial à scintillation. Moucher la dernière goutte sur le côté du vial;
- 16- Rincer la trappe avec 1 ml de KOH frais en utilisant toujours l'aiguille insérée et additionner ce volume au même vial;
- 17- Ajouter 1 ml de KOH frais dans la trappe et enlever la seringue (ce KOH sera prélevé au prochain échantillonnage);
- 18- Aérer le microcosme en introduisant environ 5 à 10 ml d'air à l'aide d'une seringue en plastique (cette étape est parfois éliminée lorsqu'il s'agit d'un polluant volatil);
- 19- Laisser équilibrer les pressions intérieures et extérieures avec l'aiguille puis reconnecter la seringue à l'aiguille et déposer celles-ci dans le bécier contenant l'eau de rinçage;
- 20- Ajouter 10 ml de cocktail à scintillation au vial à scintillation et mettre le bouchon:
ATTENTION: le cocktail à scintillation doit être ajouté à ce moment. Éviter de remplir les vials avec le cocktail avant l'échantillonnage.
- 21- Agiter le vial à scintillation (contenant le $[^{14}\text{C}]\text{CO}_2$);
- 22- Recommencer les étapes 12 à 21 pour tous les autres microcosmes en prenant soin de rincer la seringue de 5 ml à l'eau distillée trois fois entre chaque microcosme et à la toute fin. Les solution de rejet sont déposées dans le bécier identifié « rejet »;
- 23- Placer tous les vials dans le support à vials et ajouter une languette identifiée PROTOCOLE 1 sur le côté du support marqué d'un point rouge;
- 24- Faire compter dans le compteur à scintillation liquide en plaçant le support point rouge vers la droite et en choisissant les commandes START (2x) puis SELECT;

- 25- Bien indiquer les échantillons sur la feuille d'inventaire du compteur en notant aussi le numéro de fichier (voir ex. en Annexe).
- 26- Entreposer à nouveau les microcosmes à la température voulue, à la noirceur si nécessaire (cabinet gris d'entreposage des microcosmes radioactifs) jusqu'au prochain échantillonnage;

4.50 Nettoyage

- 1- Laver au CONTRAD® les béciers ayant servi au rinçage des seringues dans l'évier, les remplir d'eau distillée et de CONTRAD® puis laisser tremper;
- 2- Retirer le papier absorbant en l'enroulant sur lui-même et le jeter à la poubelle;
- 3- Nettoyer à fond la hotte avec du détergent CONTRAD®;
- 4- Retirer les deux paires de gants de façon à ne pas toucher l'extérieur de ces derniers puis jeter les gants à la poubelle;
- 5- À la toute fin de l'expérience de minéralisation (après l'obtention du plateau) consulter le PSO S2 pour connaître la procédure de décontamination des microcosmes radioactifs.

5.00 Calculs

Pourcentage de minéralisation:

$$\% \text{ de minéralisation} = \frac{\text{nb de dpm au temps X} - \% \text{ min. au temps X-1}}{\text{nb de dpm moyen dans les contrôles de départ}} \times 100$$

Les résultats des expériences de minéralisation en microcosmes sont reportés sous forme de graphiques du % de minéralisation en fonction du temps et possède l'allure suivante:

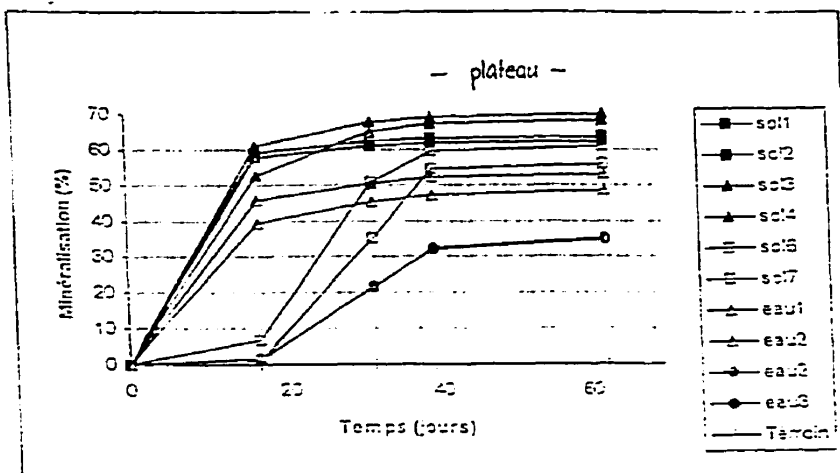


Figure 5.1: Graphique du pourcentage de minéralisation en fonction du temps (jours).

ORIGINAL

Protocole: A10 , Version: 2 , Page:9,c/windows/psd.doc, 96-06-07

6.00 Limites de la méthode

Cette technique ne tient pas compte du ^{14}C incorporé dans la biomasse.

7.00 Références

Samson, R.Cseh, T. Hawari, J. Demeter , A. Al-Bashir et B. Leduc. Effect of redox conditions, soil / contaminant interaction and chemical structure on the biodegradation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in flooded soil (1991). World Environment, Acta Press , Calgary.

Otte, M - P. Gagnon, J. Comeau, Y. Matte, N. Greer, C. W. et Samson, R. Activation of an indigenous microbial consortium for bioaugmentation of pentachlorophenol / creosote contaminated soil (1994). Applied microbiology and biotechnology, vol. 40 : 926-932.

Millette, D., Baker, J., Comeau, Y. Butler, B. Frind, E. O. Clément, B. et Samson, R. Substrate interaction during aerobic biodegradation of creosote-related compounds : a factorial experiment (1995). Environ. Sci : Technol. 29: 1744-1952

8.00 Notes

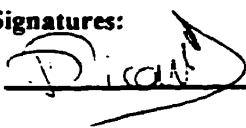
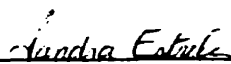
- Pour tout problème avec le compteur à scintillation, consulter le guide d'utilisation ou le responsable du laboratoire.
- Le PROTOCOLE 1 indique au compteur de procéder à une lecture de 5 minutes pour chaque vial. Le PROTOCOLE 00 (Easy count) équivaut à une lecture de 1 minute / vial. Il existe par ailleurs d'autres protocoles à votre disposition correspondant à d'autres temps de lecture. De plus, il est possible de programmer des protocoles pour des temps spécifiques.
- Un bon compte ou un compte significatif possède un SaQM près de 100%, si ce n'est pas le cas, vérifier les autres indices de qualité.
- Échantillonner autant de fois qu'il en sera nécessaire jusqu'à l'obtention du plateau avec un minimum de 1000 dpm par échantillonnage pour l'obtention d'un compte significatif.
- Les résultats sont exprimés en % de radioactivité récupérée.
- Disposer de l'eau de rinçage dans le lavabo tout en laissant couler l'eau du robinet généreusement.

ORIGINAL

D.8 PSO-A12 : DÉNOMBREMENT TOTAL DE MICRO-ORGANISMES HÉTÉROTROPHES PAR LA MÉTHODE DU NOMBRE LE PLUS PROBABLE (NPP)



ORIGINAL

PROTOCOLE STANDARD D'OPÉRATION	
Protocole#: A12	Pages: 8
Version: 1	Date: 28-août-96
Auteurs: Pascale Picard	Signatures:
	
Approuvé par: 	Date: 97/04/03

Titre: Dénombrement total de micro-organismes hétérotrophes par la méthode du nombre le plus probable (NPP)
Mots clés: dénombrement, nombre le plus probable, NPP, MPN, hétérotrophes

1.00 Domaine d'application

Cette méthode de dénombrement s'applique à toute substance pouvant contenir des micro-organismes (ex. échantillons de sols et d'eaux).

2.00 Principes de la méthode

Il s'agit d'une estimation de la densité moyenne de micro-organismes hétérotrophes dans un échantillon donné, par un test statistique. L'échantillon est dilué en série, et des aliquots de chaque dilution sont incubés dans un milieu de croissance dans des tubes. Il y a croissance dans les tubes d'incubation lorsqu'un organisme ou plus sont présents. Le nombre de micro-organismes hétérotrophes dans l'échantillon est déterminé d'après le nombre de tubes où il y a eu croissance pour chaque dilution et en se servant des tables de l'index NPP.

3.00 Matériel

... solution saline 0.85 % dans l'eau distillée soit NaCl 8.5 g/L

Protocole: A12 . Version: 1 . Page:2,c/windows/psa.doc, 96-06-07

- Nutrient Broth (Becton Dickinson, MD, USA)
- eau distillée (pH 7)
- bouteilles à dilution de 150 mL (1 par dilution), et bouchons
- tubes de verre à bouchon vissé de 15 mL (5 par dilution + 2 pour les contrôles), et bouchons
- pipettes stériles de 10 mL
- vortex
- dispensettes 10 et 25 mL (dispensette 25 mL à emprunter au local A-660.1)
- micropipette 1000 μ L
- embouts à micropipette stériles

Pour un dénombrement sur un échantillon de sol, il faut en plus :

- matériel pour déterminer le taux d'humidité (psa A7)
- 30 billes de verre de 3 mm de diamètre (glass beads solids, Fisher) par échantillon
- une cupule en aluminium et deux spatules par échantillon
- agitateur Wrist Action (Burrel, PA, USA)
- balance (Mettler Toledo PB302)
- éthanol 70%

4.00 Mode Opératoire

Un schéma opératoire est présenté en annexe.

4.01 Choix du nombre de dilutions

Si la densité de micro-organismes dans l'échantillon est inconnue, il faudra effectuer 7 dilutions de la suspension primaire (donc 8 bouteilles à dilution identifiées 10^0 à 10^{-7} , et 5x8 tubes identifiés de 10^{-1} à 10^{-8} plus 2 tubes de contrôle).

Si la plage de densité microbienne est connue, il est possible de n'effectuer que trois dilutions pour obtenir le NPP. Le tableau 4.1 indique quelles dilutions effectuer dans les tubes suivant la densité prévue. Mais il faudra quand même préparer toutes les dilutions successives dans les bouteilles (3e colonne du tableau 4.1).

Tableau 4.1 dilutions à effectuer suivant la plage de densité microbienne lorsqu'elle est connue

densité de micro-organismes prévue/100 mL ou/10 g de sol	dilution dans les tubes	bouteilles à préparer
20 à 16 090	10^{-1} - 10^{-2} - 10^{-3}	10^0 à 10^{-2}
200 à 160 900	10^{-2} - 10^{-3} - 10^{-4}	10^0 à 10^{-3}
2000 à 1 609 000	10^{-3} - 10^{-4} - 10^{-5}	10^0 à 10^{-4}

ORIGINAL

4.02 Préparation des tubes

- 1- prendre 5 tubes par dilution souhaitée plus 2 tubes pour les contrôles
- 2- préparer une solution de Nutrient Broth 8 g/L dans de l'eau distillée
- 3- placer 9 mL de cette solution dans chaque tube à l'aide de la dispensette de 10 mL.
Calibrer avant la dispensette avec un cylindre de 10 mL.
- 4- ajouter 1 mL de solution saline 0.85% dans chacun des 2 tubes de contrôle
- 5- vérifier le pH dans les tubes de contrôle, il doit être de 7.0 ± 0.2
- 6- fermer les tubes, les autoclaver 20 minutes (121 °C, 103.4 kPa) et les laisser refroidir
- 7- identifier les tubes (on peut identifier avant autoclavage mais le feutre s'efface)

4.03 Préparation des dilutions en série

Pour un échantillon de sol

- 1- déterminer le taux d'humidité du sol (voir pso A7)
- 2- préparer la bouteille pour la suspension primaire (dilution 10^0): mettre 95 mL de solution saline avec la dispensette 25 mL dans la bouteille identifiée 10^0 , et ajouter 30 billes de verre. On peut aussi mettre les 95 mL en remplissant un ballon jaugé de 100 mL et en enlevant 5 mL à la pipette.
- 3- mettre 90 mL de solution saline dans chaque autre bouteille.
- 4- fermer et autoclaver toutes les bouteilles 20 minutes (121 °C, 103.4 kPa); les laisser refroidir
- 5- identifier les bouteilles (10^0 , 10^{-1} , ...)

travailler dès maintenant en conditions stériles- passer les goulots des tubes et des bouteilles à la flamme après ouverture et avant fermeture

- 6- stérilisation du matériel : placer une cupule en aluminium et deux spatules sous la hotte laminaire, et actionner la lumière UV pendant 10 minutes
- 7- mettre en place la balance sous la hotte (lumière normale), ajuster son niveau et la calibrer (voir pso E1). Nettoyer le plateau de la balance avec de l'éthanol 70%
- 8- peser approximativement 10 g de sol (noter le poids exact) dans la cupule
- 9- ajouter tout le contenu de la cupule dans la bouteille de dilution 10^0 avec l'autre spatule. Si le sol est difficile à décoller de la cupule et de la spatule, rincer la cupule et la spatule avec un peu de solution de la bouteille
- 10- agiter la bouteille au Wrist Action pendant 30 minutes
- 11- préparer les dilutions successives :
 - ouvrir la bouteille identifiée 10^{-1} et passer le goulot à la flamme
 - brasser manuellement la bouteille 10^0 pendant 10 secondes, ouvrir, passer le goulot à la flamme
 - rebrasser, pipeter 10 mL avec une pipette neuve et les placer dans la bouteille identifiée 10^{-1}
 - passer les goulots à la flamme et fermer. La bouteille 10^{-1} est préparée
 - répéter le point 11 en utilisant la nouvelle dilution préparée comme inoculum, jusqu'à la dernière dilution voulue

ORIGINAL

Pour un échantillon aqueux

- 1- mettre 90 mL de solution saline dans chaque bouteille de 150 mL avec la dispensette 25 mL, ou bien avec un ballon jaugé à 100 mL auquel on aura enlevé 10 mL à la pipette
- 2- fermer, autoclaver 20 minutes (121 °C, 103.4 kPa) et laisser refroidir
- 3- identifier les bouteilles de 150 mL (10^{-1} , 10^{-2} , ...). La suspension primaire, soit la dilution 10^0 , correspond à l'échantillon initial à tester

travailler dès maintenant en conditions stériles- passer les goulots des tubes et des bouteilles à la flamme après ouverture et avant fermeture

- 4- préparer les dilutions successives:
 - ouvrir la bouteille identifiée 10^{-1} et passer le goulot à la flamme
 - brasser manuellement la bouteille 10^0 pendant 10 secondes, ouvrir, passer le goulot à la flamme
 - rebrasser, pipeter 10 mL avec une pipette neuve et les placer dans la bouteille identifiée 10^{-1}
 - passer les goulots à la flamme et fermer. La bouteille 10^{-1} est préparée
 - répéter le point 4 en utilisant la nouvelle dilution préparée comme inoculum, jusqu'à la dernière dilution voulue

4.04 Inoculation des tubes

Toujours travailler en conditions stériles- passer les goulots à la flamme

- 1- brasser la bouteille 10^0 pendant 10 secondes
 - pipeter 1 mL à la micropipette, en continuant de brasser
 - placer dans un tube identifié 10^{-1}
 Répéter cette opération dans les quatre autres tubes identifiés $10^{-1} \Rightarrow$ on obtient les 5 aliquots de la dilution 10^{-1} .
 Evidemment, si la plage de densité de micro-organismes est connue et qu'on n'a pas besoin des tubes 10^{-1} , on ne les fait pas!
- 2- reboucher les tubes, et les agiter 3 secondes au vortex
- 3- changer d'embout et répéter les points 1 et 2 avec chaque autre bouteille à dilution : avec la bouteille 10^{-1} on obtient les 5 tubes 10^{-2} , et ainsi de suite
- 4- incuber tous les tubes à 30°C, y compris les deux contrôles, pendant 7 jours ou jusqu'à ce que les résultats ne changent plus avec le temps

4.05 Décontamination des tubes après lecture des résultats

Cette étape est obligatoire afin de ne pas infecter le réseau d'égout. Tous les tubes doivent être autoclavés 20 minutes (121°C, 103.4 kPa). Leur contenu refroidi est ensuite jeté à l'évier.

ORIGINAL

5.00 Calculs

1- après la période d'incubation, observer chaque tube (l'inverser 2 fois pour mieux observer la présence de turbidité). Si une turbidité est notée, le tube est compté positif, si il est resté limpide, comme les contrôles, il est compté négatif. Noter pour chaque dilution le nombre de tubes positifs sur les 5 incubés, sur un tableau récapitulatif (exemple au tableau 5.1).

2- sélectionner la combinaison de positifs : trois dilutions successives sont choisies pour déterminer l'index NPP, de la manière suivante : choisir la plus grande dilution qui donne un résultat positif maximum (5/5 est le maximum, 0/5 le minimum) et les deux dilutions suivantes. Les nombres de tubes positifs pour chacune de ces trois dilutions constituent la combinaison de positifs (voir l'exemple a).

exception 1 : il y a un résultat positif à une dilution plus grande que la dernière choisie par la règle précédente : additionner ce résultat à la dernière dilution, ce qui donne la même combinaison que l'exemple c.

exception 2 : choisir les trois dilutions de manière à retrouver le résultat positif "maximum" au centre des trois dilutions.

Tableau 5.1 Exemple de tableau de résultats

exemples	dilution dans les tubes				combinaison de positifs	Index NPP	cellules/100 mL ou /10 g sol
	10^{-1}	10^{-2}	10^{-3}	10^{-4}			
a	5/5*	5/5	2/5	0/5	5-2-0	50	$50 \cdot 10^2 = 5000$
b	5/5	4/5	2/5	0/5	5-4-2	220	$220 \cdot 10^1 = 2200$
c	5/5	3/5	2/5	0/5	5-3-2	140	$140 \cdot 10^1 = 1400$
exception 1	5/5	3/5	1/5	1/5	5-3-2	140	$140 \cdot 10^1 = 1400$
exception 2	0/5	1/5	0/5	0/5	0-1-0	2	$2 \cdot 10^1 = 20$

* (nombre de tubes positifs)/(nombre de tubes ensemencés)

3- noter l'index NPP correspondant à cette combinaison à l'aide de la table 5.2.

4- Multiplier l'index NPP par 10^x , la plus petite dilution de la combinaison de positifs étant 10^x .

exemple a : les dilutions de la combinaison sont 10^{-2} , 10^{-3} et 10^{-4} . La plus petite dilution est donc 10^{-2} , il faut alors multiplier l'index NPP par 10^{-2} , soit $50 \cdot 10^2 = 5000$.

Ce résultat correspond au nombre de micro-organismes hétérotrophes par 100 mL d'échantillon liquide, ou par 10 g de sol pesé (soit le poids exact pesé).

5- On exprime les résultats en fait en nombre de micro-organismes par mL de liquide, ou par g SEC de sol, connaissant le taux d'humidité du sol déterminé en début d'expérience.

Tableau 5.2 Index NPP avec une limite de confiance de 95% selon les combinaisons de résultats positifs, lorsque 5 tubes par dilution sont utilisés

Combination of Positives	MPN Index/ 100 mL	95% Confidence Limits		Combination of Positives	MPN Index/ 100 mL	95% Confidence Limits	
		Lower	Upper			Lower	Upper
0-0-0	< 2	—	—	4-2-0	22	9.0	56
0-0-1	2	1.0	10	4-2-1	26	12	65
0-1-0	2	1.0	10	4-3-0	27	12	67
0-2-0	4	1.0	13	4-3-1	33	15	77
				4-4-0	34	16	80
1-0-0	2	1.0	11	5-0-0	23	9.0	86
1-0-1	4	1.0	15	5-0-1	30	10	110
1-1-0	4	1.0	15	5-0-2	40	20	140
1-1-1	6	2.0	18	5-1-0	30	10	120
1-2-0	6	2.0	18	5-1-1	50	20	150
				5-1-2	60	30	180
2-0-0	4	1.0	17	5-2-0	50	20	170
2-0-1	7	2.0	20	5-2-1	70	30	210
2-1-0	7	2.0	21	5-2-2	90	40	250
2-1-1	9	3.0	24	5-3-0	80	30	250
2-2-0	9	3.0	25	5-3-1	110	40	300
2-3-0	12	5.0	29	5-3-2	140	60	360
3-0-0	8	3.0	24	5-3-3	170	80	410
3-0-1	11	4.0	29	5-4-0	130	50	390
3-1-0	11	4.0	29	5-4-1	170	70	430
3-1-1	14	6.0	35	5-4-2	220	100	530
3-2-0	14	6.0	35	5-4-3	280	120	690
3-2-1	17	7.0	40	5-4-4	350	160	820
4-0-0	13	5.0	38	5-5-0	240	100	940
4-0-1	17	7.0	45	5-5-1	300	100	1300
4-1-0	17	7.0	46	5-5-2	500	200	2000
4-1-1	21	9.0	55	5-5-3	900	300	2900
4-1-2	26	12	65	5-5-4	1600	600	5300
				5-5-5	≥ 1600	—	—

(source : Standard Methods for the examination of Water and Wastewater, APHA, AWWA, WEF, ed., 18th edition, 1992)

6.00 Limites de la méthode

La précision de la méthode est assez faible, mais elle a l'avantage d'être une méthode statistique. Si un échantillon contient 100 micro-organismes/100 mL, la probabilité que les cinq tubes de dilution 10^{-1} donnent tous des résultats négatifs (i.e. aucune croissance) est de 1%.

ORIGINAL

Cette méthode tend à surestimer la densité bactérienne réelle.

Il y aura sous-estimation du nombre de micro-organismes si certains facteurs inhibant la croissance de la biomasse sont présents, ou encore si les bouteilles ne sont pas suffisamment brassées pour homogénéiser les différentes dilutions avant l'inoculation dans les tubes.

7.00 Références

APHA, AWWA, WEF, ed., 1992. Standard Methods for the examination of Water and Wastewater, 18th edition.

Cochran W. G., 1950. Estimation of bacterial density by means of the «most probable number», *Biometrics*, june 1950.

8.00 Notes

Autoclavage des tubes et des bouteilles : on peut ne pas visser complètement les bouchons et les fermer correctement à la sortie de l'autoclave, mais il y a un risque d'évaporation durant l'autoclavage. Si au contraire les bouchons sont bien fermés, il y a un risque de bris. Le mieux est de choisir une fois pour toutes une des 2 méthodes et de l'appliquer constamment. Une méthode encore meilleure serait d'autoclaver les tubes et bouteilles vides et de les remplir stérilement avec les solutions autoclavées à par. Cependant, la dispensette ne s'autoclave pas, ce qui rend le remplissage à la pipette fastidieux!

Le délai standard entre le recueillement d'un échantillon aqueux sur le site et l'analyse est idéalement inférieur à 30 heures, en conservant l'échantillon à 4°C.

L'extraction des micro-organismes du sol dans la suspension primaire peut nécessiter un temps d'agitation supérieur à 30 minutes si les micro-organismes sont très attachés (par ex. sur un sol argileux).

Il arrive que la croissance soit rapide et qu'une lecture puisse s'effectuer après 48 heures d'incubation. Cependant, il est préférable de confirmer ce résultat en faisant une nouvelle lecture après les 7 jours d'incubation.

La méthode est réalisable avec 3 tubes par dilution au lieu de 5, mais la précision en est affectée (voir pour plus de détails «Standard Methods for the examination of Water and Wastewater»). De plus la table d'index est différente de celle indiquée dans ce protocole.

ANALYSE

ANNEXE E : CARTOGRAPHIE DU SITE

E.1 PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE DE CRUE, 6 MAI 1997

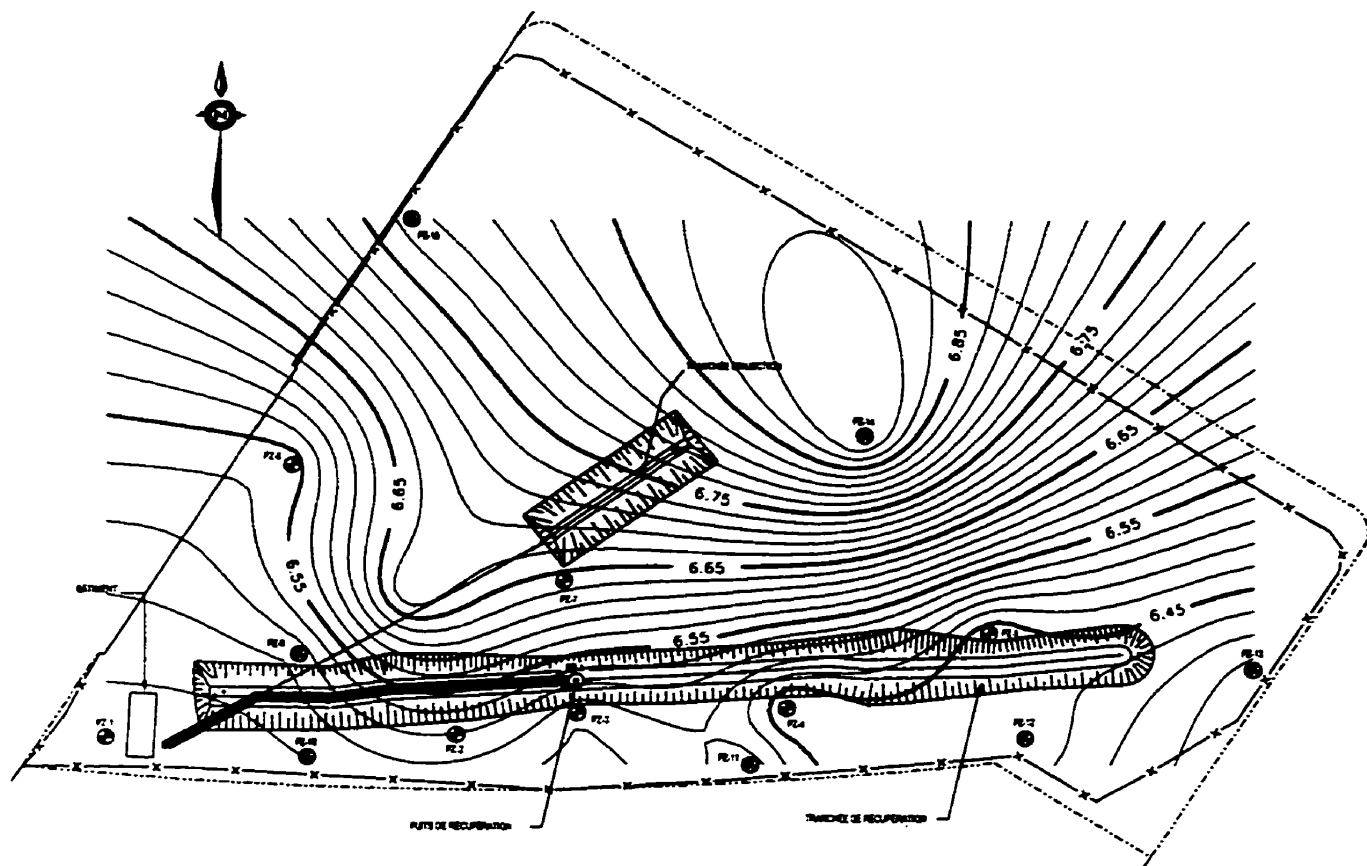


Figure 1
PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE DE CRUE
(rabattement à raison de 25 l/min)
6 mai 1997

LÉGENDE

- LIMITE DE PROPRIÉTÉ
- x— CLÔTURE EXISTANTE
- Puits d'observation (août 1995)
- Puits d'observation (novembre 1995)
- ISOCONTOUR (m)

Échelle 1:500
0 5 10 15 20 25 m

CONSULTANTS



SNC-LAVALIN
Environnement

E.2 PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE HIVERNALE, 5 JANVIER 1998

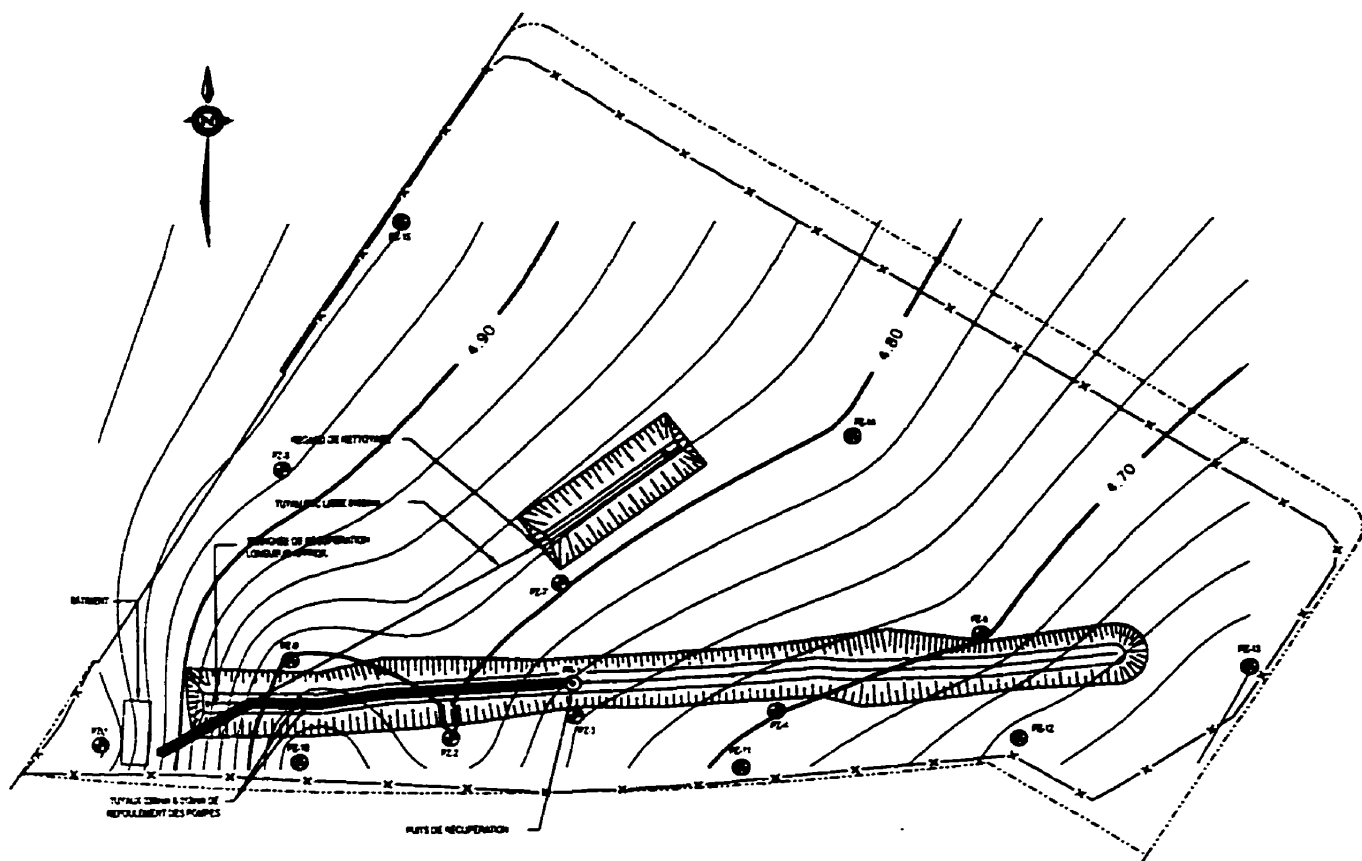


Figure 2
PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE
D'ÉTIAGE HIVERNAL
(niveau statique)
5 janvier 1998

LÉGENDE

- LIMITE DE PROPRIÉTÉ
- x- CLÔTURE EXISTANTE
- PUIS D'OBSERVATION (août 1995)
- PUIS D'OBSERVATION (novembre 1995)
- ISOCONTOUR (m)

Échelle 1:500
0 5 10 15 20 25 m

CONSEILS



SNC-LAVALIN
Environnement

E.3 PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE AUTOMNALE, 31 OCTOBRE 1998

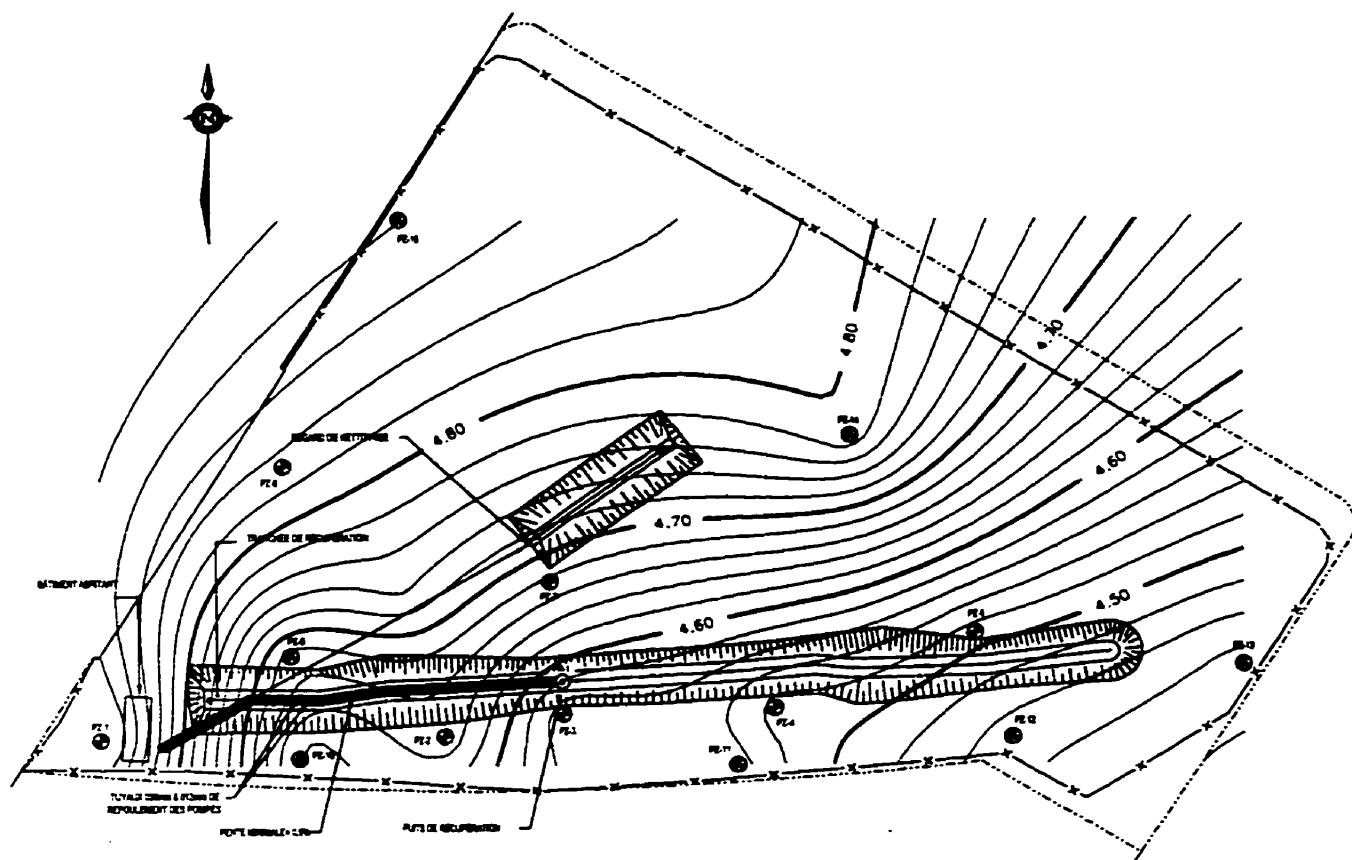
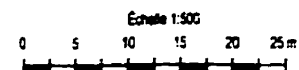


Figure 3
PIÉZOMÉTRIE EN PÉRIODE AUTOMNALE
(rabattement à raison de 20 l/min)
31 octobre 1998

LÉGENDE

- LIMITE DE PROPRIÉTÉ
- x— CLÔTURE EXISTANTE
- PUIS D'OBSERVATION (août 1995)
- PUIS D'OBSERVATION (novembre 1995)
- ISOCONTOUR (m)

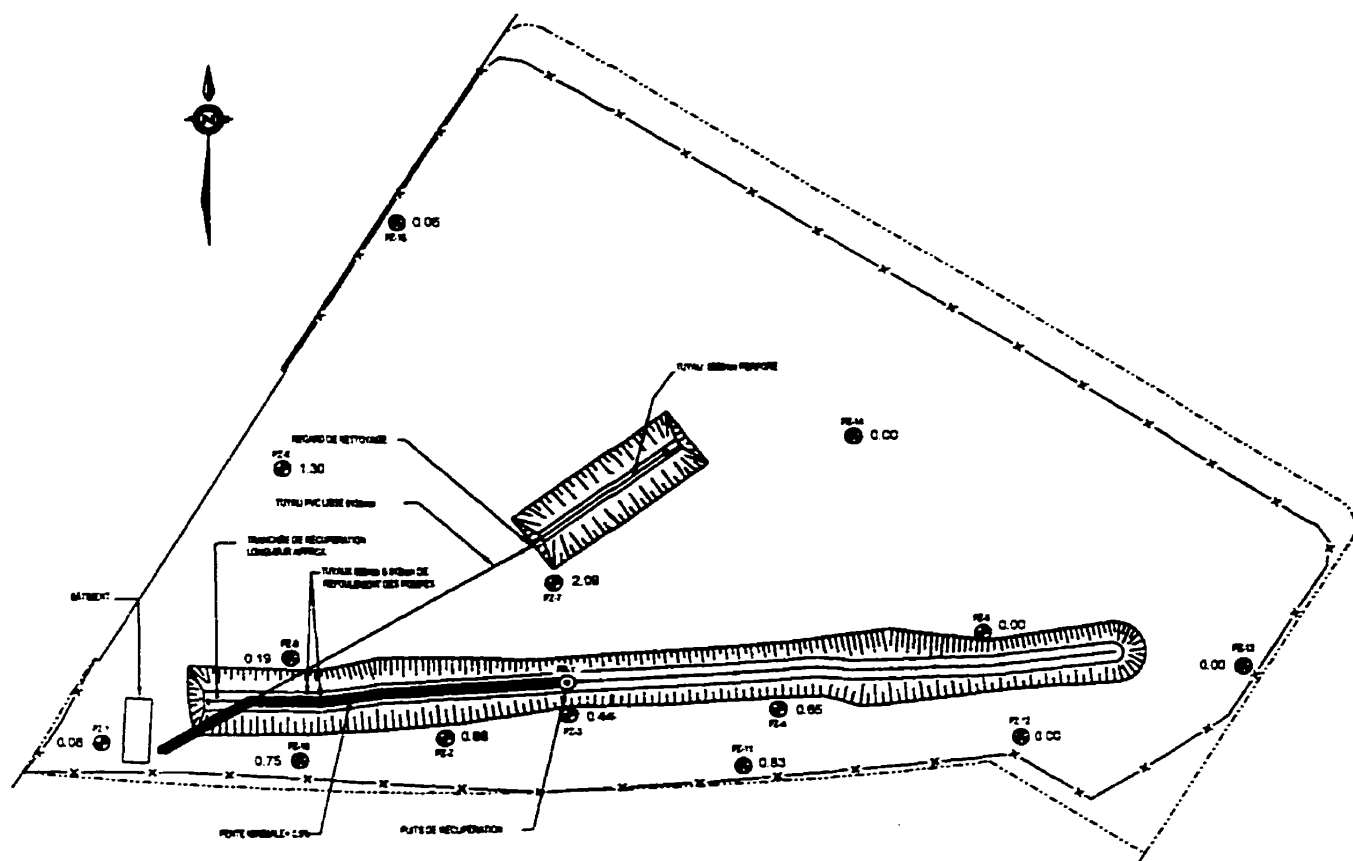


CONSULTANTS



SNC-LAVALIN
Environnement

E.4 ÉPAISSEURS MOYENNES D'HYDROCARBURES (1998)



LÉGENDE

- LIMITE DE PROPRIÉTÉ
- x— CLÔTURE EXISTANTE
- P1 P14 PUIS D'OBSERVATION (août 1998)
- P14 0.83 — ÉPAISSEURS D'HYDROCARBURES (m)

Échelle 1:500
0 5 10 15 20 25 m

CONSULTANTS



SNC-LAVALIN
Environnement

ANNEXE F : CALCULS

F.1 CALCUL DU NOMBRE DE TROUS SUR LA PLAQUE PERFORÉE

Plaque de Plexiglas

Épaisseur : 1/8 " (0,3175 cm)

Diamètre : 22 5/8 " (22,625 " = 57,468 cm)

Diamètre des trous : 1/8 " (0,3175 cm)

Par l'équation de Bernouilli (CRANE, 1988) :

$$\frac{v^2}{2g} + (h_2 - h_1) + \sum h_L = 0 \quad (\text{F.1})$$

où v = vitesse de l'eau à la sortie d'un trou
 $(h_2 - h_1)$ = tête d'eau sur la plaque + épaisseur de la plaque
 $\sum h_L$ = somme des pertes de charges

a) Détermination des pertes de charge :

$$\sum h_L = \frac{v^2}{2g} (K_{\text{contraction soudaine}} + K_{\text{expansion soudaine}}) \quad (\text{F.2})$$

avec $K_{\text{contraction soudaine}} = 0,5 (1 - \beta^2) = 0,5 \quad (\text{F.3})$

et $K_{\text{expansion soudaine}} = (1 - \beta^2)^2 = 1 \quad (\text{F.4})$

d'où $\sum h_L = 1,5 \frac{v^2}{2g} \quad (\text{F.5})$

b) Détermination du nombre de trous sur la plaque :

Débit à alimenter à un biofiltre : 1,833 L/min

Aire d'un trou : 0,079173 cm²

Pour obtenir une distribution égale par tous les trous, il est important d'avoir une tête d'eau suffisante sur le dessus de la plaque. Ainsi, plusieurs hauteurs de tête d'eau ont

été posées et le nombre de trous à percer sur la plaque perforée en a été déduit (tableau F.1).

Tableau F.1 : Détermination du nombre de trous à percer sur la plaque perforée pour obtenir un débit total de 1,8 L/min

Tête (h_2-h_1) posée (po)	Tête (h_2-h_1) posée (cm)	v (cm/s)	Débit/trou (cm ³ /s)	Débit/trou (cm ³ /min)	Nbre de trous nécessaires
1/32	0,079375	17,63944	1.396569	83.79411	
1/16	0,15875	19,32304	1.529864	91.79185	
1/8	0,3175	22,31233	1.766535	105.9921	17.29689
1/4	0,6350	27,32691	2.163555	129.8133	14.12285

Comme un nombre de trous assez élevé était désiré pour que l'alimentation se fasse par le plus de points possibles, mais qu'une tête d'eau suffisante devait être assurée (i.e. supérieure à 0,08 cm), il a été décidé de percer **20 trous de 0,3175 cm de diamètre** sur la plaque de Plexiglas.

F.2 INCERTITUDES SUR LES RÉTENTIONS (ESSAIS HYDROSTATIQUES)

Les incertitudes ont été déterminées à partir des erreurs de mesures, selon la méthode des dérivées partielles. Un exemple de calcul est présenté ici pour l'erreur sur la rétention liquide statique.

Erreurs de mesures :

$$\Delta V_{\text{total}} : \pm 100 \text{ mL}$$

$$\Delta V_{\text{eau}} : \pm 10 \text{ mL}$$

$$\Delta V_{\text{drainé}} : \pm 6 \text{ mL}$$

$$\Delta M_{\text{tourbe sèche}} : \pm 0,4 \text{ g}$$

Incertitude

$$\Delta \varepsilon_{LS} = \left| \frac{\partial \varepsilon_{LS}}{\partial V_{\text{eau}}} \right| \Delta V_{\text{eau}} + \left| \frac{\partial \varepsilon_{LS}}{\partial V_{\text{drainé}}} \right| \Delta V_{\text{drainé}} + \left| \frac{\partial \varepsilon_{LS}}{\partial V_{\text{total}}} \right| \Delta V_{\text{total}} \quad (\text{F.6})$$

$$\Delta \varepsilon_{LS} = \frac{1}{V_{\text{total}}} \Delta V_{\text{eau}} + \frac{1}{V_{\text{total}}} \Delta V_{\text{drainé}} + \frac{V_{\text{eau}} - V_{\text{drainé}}}{V_{\text{total}}^2} \Delta V_{\text{total}} \quad (\text{F.7})$$

$$\Delta \varepsilon_{LS} = \frac{1}{2000} \times 10 + \frac{1}{2000} \times 6 + \frac{(1755 - 903)}{2000^2} \times 100 = 0,04 \quad (\text{F.8})$$

F.3 CALCUL DES PERTES PAR VOLATILISATION DANS LES BIOFILTRÉS

a) Détermination de la pression partielle de BTEX

La loi d'Henry, donnée par l'expression suivante, permet de déterminer la pression partielle des BTEX dans l'espace de tête des biofiltres :

$$P_{BTEX}(T) = H_{BTEX}(T) \times X^{liq} \quad (F.9)$$

$P_{BTEX}(T)$: pression partielle des BTEX dans l'air à T°C, en kPa

$H_{BTEX}(T)$: constante de Henry à T°C = 0,656 kPa.m³/mol
(valeur moyenne pour tous les BTEX)

X^{liq} : fraction de BTEX dans l'eau = 10 mg/L = 0,1 mol/m³

Comme seules les valeurs de $H(25^\circ\text{C})$ étaient connues, ces constantes ont été employées, puisqu'elles surestiment la quantité de BTEX volatilisée (pire scénario).

d'où $P_{BTEX} = 0,0656 \text{ kPa}$

b) Estimation de la concentration de BTEX dans le gaz

Considérant que la loi de Dalton s'applique, il est ensuite possible d'estimer la fraction molaire de BTEX dans la phase gazeuse :

$$X^{gaz} = \frac{P_{BTEX}}{P_{total}} \quad (F.10)$$

X^{gaz} : fraction molaire de BTEX dans la tête d'air

P_{total} : pression atmosphérique totale = 101,32 kPa

d'où $X^{gaz} = 6,4745 \times 10^{-4} \text{ mol BTEX/mol d'air}$

La fraction molaire de BTEX dans le gaz peut enfin être transformée en concentration, en estimant la masse molaire moyenne des BTEX à 100 g/mol et en supposant des

conditions normales (donc 22,4 L/mol d'air). On obtient ainsi **une concentration en BTEX de 2,89 mg/L d'air.**

c) Calcul de la quantité de BTEX volatilisé

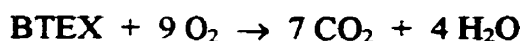
En estimant le volume de la tête d'air à environ 20 L, **la quantité de BTEX pouvant être volatilisée est de 57,8 mg, soit environ 60 mg.**

F.4 CALCUL DE LA DEMANDE THÉORIQUE EN OXYGÈNE (DTO) DANS L'EAU SOUTERRAINE ET DE LA CAPACITÉ MAXIMALE D'AÉRATION DU DIFFUSEUR

CALCUL DE LA DTO

a) Biodégradation des BTEX

De façon générale, la réaction de biodégradation aérobie des BTEX s'écrit :



Considérant le toluène (C_7H_8) comme composé représentant l'ensemble des BTEX, il est possible d'estimer la concentration molaire de BTEX dans l'eau souterraine :

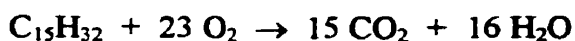
$$10 \text{ mg BTEX/L} \div 92,13 \text{ mg/mmol} = 0,11 \text{ mmol BTEX/L}$$

La quantité d'OD nécessaire à la réaction de biodégradation est donc de :

$$0,99 \text{ mmol O}_2/\text{L} \times 32 \text{ mg/mmol} = 32 \text{ mg O}_2/\text{L}$$

b) Biodégradation des hydrocarbures pétroliers

Parmi les hydrocarbures pétroliers, seuls les C_{10} - C_{20} ont été mesurés dans l'eau souterraine. Le $\text{C}_{15}\text{H}_{32}$ a été choisi pour représenter l'ensemble des hydrocarbures pétroliers. La réaction de biodégradation s'écrit donc :



La concentration molaire d'hydrocarbures peut être estimée par :

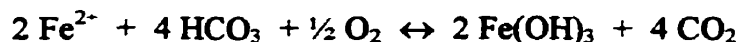
$$3 \text{ mg C}_{15}\text{H}_{32}/\text{L} \div 212 \text{ mg/mmol} = 0,014 \text{ mmol C}_{15}\text{H}_{32}/\text{L}$$

La quantité d'OD nécessaire à la réaction de biodégradation est donc de :

$$0,33 \text{ mmol O}_2/\text{L} \times 32 \text{ mg/mmol} = 10 \text{ mg O}_2/\text{L}$$

c) **Oxydation du fer ferreux**

La réaction d'oxydation du fer ferreux en fer ferrique s'écrit :



Considérant que tout le fer présent dans l'eau souterraine est transformé selon la réaction ci haut, la concentration molaire de fer peut être estimée à :

$$35 \text{ mg Fe/L} \div 55,847 \text{ mg/mmol} = 0,63 \text{ mmol Fe/L}$$

La quantité d'OD nécessaire à l'oxydation de ce fer est donc de :

$$0,16 \text{ mmol O}_2/\text{L} \times 32 \text{ mg/mmol} = 5 \text{ mg O}_2/\text{L}$$

En tout la DTO totale (des sections a, b et c) est donc de 47 mg O₂/L

CALCUL DE LA CAPACITÉ D'AÉRATION MAXIMALE DU DIFFUSEUR

Le débit d'air alimenté au bassin de rétention était de 5 500 cm³/min. Considérant que tout l'oxygène contenu dans l'air était transféré à l'eau et que l'air contient 21 % d'O₂, la quantité d'O₂ transmis à l'eau était de 1 155 cm³/min.

Par la loi des gaz parfaits, il est possible de déterminer le débit molaire d'O₂ à quoi cela correspond :

$$\begin{aligned} n &= PV/RT \quad \text{avec} \quad P = 101,32 \cdot 10^5 \text{ Pa} & (F.11) \\ V &= 1\,155 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \\ R &= 8,314 \text{ m}^3 \cdot \text{Pa/mol.K} \\ T &= 15 \text{ }^\circ\text{C} = 288 \text{ K} \end{aligned}$$

d'où $n = 0,05 \text{ mmol O}_2$

Le débit de transfert d'oxygène peut donc être estimé à :

$$0,05 \text{ mmol O}_2/\text{min} \times 32 \text{ mg/mmol} = 1,6 \text{ mg O}_2/\text{min}$$

Considérant un débit d'alimentation du bassin de rétention d'environ 10 L/min (en régime permanent) et considérant que le bassin est parfaitement mélangé, il est possible de déterminer un temps de résidence hydraulique de 20 min au sein du bassin aéré ($V = 200 \text{ L}$).

À partir de ces hypothèses, la quantité maximale d'oxygène pouvant être fournie à l'eau est donc de :

$$1,6 \text{ mg O}_2/\text{min} \times 20 \text{ min} = 32 \text{ mg O}_2/\text{L}$$

**ANNEXE G : RÉSULTATS D'ANALYSES DES
COMPOSÉS BTEX SUR LE TERRAIN**

Échantillonnage d'eau à l'entrée des biofiltres								Mesures régulières			
	Date	temps jours	BTEX µg/L	Erreur 10%	B µg/L 0,5	T µg/L 0,4	E µg/L 0,3	X µg/L 0,3	pH (50 mL)	T° (°C)	OD (mg/L)
0	17/7	0	7490	749	3100	960	230	3200	7,83	14,8	0,4
1	23/7	6	9810	981	2600	2400	510	4300	6,46	13,0	0,3
2	30/7	13	9320	932	2500	2300	220	4300	6,56	13,0	--
3	6/8	20	11540	1154	2700	2800	940	5100	6,64	13,7	0,4
4	13/8	27	9500	950	2600	2400	700	3800	--	14,0	--
5	20/8	34	10240	1024	3000	2300	940	4000	6,65	13,0	1,5
6	27/8	41			--	--	--	--	--	13,4	2,8
7	3/9	48			--	--	--	--	--	--	--
8	10/9	55			--	--	--	--	--	14,5	6,3
9	17/9	62	5341	534,1	2000	800	41	2500	6,60	--	--
10	24/9	69			--	--	--	--	--	14,0	6,6
11	1/10	76	5550	555	2000	450	<24	3100	--	13,7	5,4
12	8/10	83			--	--	--	--	--	--	4,5
13	15/10	90	8310	831	3000	1400	210	3700	--	12,5	2,2
14	22/10	97	10400	1040	3500	2100	500	4300	--	14,2	0,4
15	29/10	104			--	--	--	--	--	14,6	0,7-1,1
16	5/11	111	6290	629	2500	790	<30	3000	--	13,8	3,7
17	12/11	118	--		--	--	--	--	--	13,5	1
18	20/11	126	--		--	--	--	--	--	--	--
19	28/11	132									
20	3/12	139									
21	10/12	146									
22	15/12	151	--		--	--	--	--	6,6	14,1	

	Date	temps jours	Échantillonnage d'eau à la sortie de P1						Mesures régulières				
			BTEX µg/L	Erreur 10%	B µg/L 0,5	T µg/L 0,4	E µg/L 0,3	X µg/L 0,3	pH (50 mL)	T° (°C)	OD (mg/L)	Débit 1 (L/min)	Débit 2 (L/min)
0	17/7	0	---	0	---	---	---	---	--	--	--	--	1,558
1	23/7	6	7900	790	2400	1800	<30	3700	6,50	13,8	0,5	1,412	2,143
2	30/7	13	3110	311	710	<40	<30	2400	6,55	14,7	--	1,600	2,195
3	6/8	20	4630	463	1200	230	<15	3200	6,75	15,0	0,7	1,711	2,298
4	13/8	27	9330	933	2500	2400	230	4200	--	14,5	--	1,853	2,010
5	20/8	34	9970	997	3100	2300	670	3900	6,65	14,2	--	1,564	1,980
6	27/8	41	0	0	--	--	--	--	--	14,7	1,1	1,506	1,790
7	3/9	48	0	0	--	--	--	--	--	--	--	--	--
8	10/9	55	0	0	--	--	--	--	--	--	--	--	--
9	17/9	62	0	0	--	--	--	--	--	--	--	--	--
10	24/9	69	0	0	--	--	--	--	--	12,3	0,3	--	1,558
11	1/10	76	0	0	--	--	--	--	--	--	--	1,054	1,667
12	8/10	83	0	0	--	--	--	--	--	--	--	--	1,352
13	15/10	90	6565	656,5	3200	1100	65	2200	--	--	0,7	0,581	--
14	22/10	97	8040	804	3300	1500	240	3000	--	12,2	0,4	0,491	0,845
15	29/10	104	--	--	--	--	--	--	--	--	--	0,391	1,116
16	5/11	111	3370	337	1200	370	<30	1800	--	12,5	0,4	0,376	--
17	12/11	118	0	0					--	11,0	0,9	---	1,123
18	20/11	126	0	0					--				
19	26/11	132											
20	3/12	139											
21	10/12	146											
22	15/12	151	0	0									

G.3 MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE P2

Échantillonnage d'eau à la sortie de P2								Mesures régulières					
Date	temps jours	BTEX µg/L	Erreur 10%	B µg/L 0,5	T µg/L 0,4	E µg/L 0,3	X µg/L 0,3	pH (50 mL)	T° (°C)	OD (mg/L)	Débit 1 (L/min)	Débit 2 (L/min)	
0	17/7	0	---	---	---	---	---	--	--	--	--	1,509	
1	23/7	6	7200	720	1900	1300	<30	4000	6,62	14,0	--	1,348	1,905
2	30/7	13	4080	408	1200	480	<30	2400	6,47	14,2	--	1,558	1,931
3	6/8	20	8070	807	1800	1400	170	4700	6,82	15,7	0,5	1,540	1,963
4	13/8	27	8640	864	2600	1900	140	4000	--	14,8	--	1,504	1,903
5	20/8	34	8940	894	2800	1800	440	3900	6,67	14,1	--	1,534	2,083
6	27/8	41	--	--	--	--	--	--	14,7	3,3	1,558	1,900	
7	3/9	48	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	
8	10/9	55	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	
9	17/9	62	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	
10	24/9	69	--	--	--	--	--	--	12,4	2,2	--	1,681	
11	1/10	76	--	--	--	--	--	--	12,8	0,2	1,054	1,408450704	
12	8/10	83	--	--	--	--	--	--	--	--	--	1,335	
13	15/10	90	5199	519,9	2600	750	49	1800	--	11,0	0,25	0,410	--
14	22/10	97	8100	810	3400	1500	300	2900	--	13,0	0,4	0,506	0,657
15	29/10	104	--	--	--	--	--	--	--	--	0,372	1,696	
16	5/11	111	5170	517	2000	670	<30	2500	--	12,5	0,6-0,8	0,464	--
17	12/11	118	0	0				--	11,0	--	<0,143	0,450	
18	20/11	126	0	0									
19	28/11	132											
20	3/12	139											
21	10/12	146											
22	15/12	151	0	0									

G.4 MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE S1

Échantillonnage d'eau à la sortie de S1									Mesures régulières					
Date	temps jours	BTEX µg/L	Erreur 10%	B µg/L 0,5	T µg/L 0,4	E µg/L 0,3	X µg/L 0,3	pH (50 mL)	T° (°C)	OD (mg/L)	Débit 1 (L/min)	Débit 2 (L/min)	Débit moy. (L/min)	
0	17/7	0	---	---	---	---	---	--	--	--	--	1,856	--	
1	23/7	6	11000	1100	2200	1900	2600	6,54	16,5	--	1,519	2,000	1,759	
2	30/7	13	13230	1323	3200	3800	130	6100	6,49	15,7	--	1,678	2,132	1,905
3	6/8	20	9920	992	2600	2400	620	4300	6,73	18/17,4	1,3/0,3	1,734	2,263	1,999
4	13/8	27	9680	968	2700	2300	780	3900	--	16,2	--	1,761	2,122	1,941
5	20/8	34	10070	1007	3000	2300	870	3900	6,65	15	--	1,818	2,099	1,959
6	27/8	41	--	--	--	--	--	--	--	15,1	0,2	1,713	1,856	1,784
7	3/9	48	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
8	10/9	55	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
9	17/9	62	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
10	24/9	69	--	--	--	--	--	--	14,7	1,3	--	1,638	--	--
11	1/10	76	3840	384	1100	140	<15	2600	--	13,5	0,5	1,121	1,408	1,265
12	8/10	83	--	--	--	--	--	--	--	--	--	1,47	--	--
13	15/10	90	7472	747,2	3200	1200	72	3000	--	11,7	0,3	0,452	--	--
14	22/10	97	7910	791	3100	1400	210	3200	--	13,8	0,3	0,342	0,454	--
15	29/10	104	--	--	--	--	--	--	--	--	--	0,227	0,951	--
16	5/11	111	6230	623	2400	830	<30	3000	--	12,5	0,5	0,327	--	--
17	12/11	118	--	--	--	--	--	--	--	14,1	0,4	0,121	0,794	--
18	20/11	126	0	0										
19	26/11	132												
20	3/12	139												
21	10/12	146												
22	15/12	151	0	0										

G.5 MESURES DANS L'EAU À LA SORTIE DE S2

Echantillonnage d'eau à la sortie de S2														
Date	temps jours	BTEX		B		T	E	X	Mesures régulières					
		µg/L	Erreur 10%	µg/L 0,5	µg/L 0,4	µg/L 0,3	µg/L 0,3	pH (50 mL)	T° (°C)	OD (mg/L)	Débit 1 (L/min)	Débit 2 (L/min)	Débit moy. (L/min)	
0	17/7	---	0	---	---	---	---	---	--	--	--	--	1,818	--
1	23/7	10170	1017	2400	2700	570	4500	6,60	15,5	1,1	1,333	2,034	1,684	--
2	30/7	6000	600	1600	1100	<30	3300	6,50	16,0	--	1,548	2,080	1,814	--
3	6/8	7790	779	2500	1600	190	3500	6,72	7,2/17,0	1,3/0,4	1,734	2,217	1,976	--
4	13/8	9390	939	2600	2200	690	3900	--	16,0	--	1,765	1,952	1,859	--
5	20/8	9620	962	3000	2200	820	3600	6,62	16,0	--	1,564	2,072	1,818	--
6	27/8	--	--	--	--	--	--	--	15,3	0,4	1,414	1,677	1,545	--
7	3/9	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
8	10/9	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
9	17/9	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
10	24/9	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
11	1/10	2589	258,9	830	59	<6,0	1700	--	14,5	1,0	--	1,678	--	--
12	8/10	--	--	--	--	--	--	--	13,5	1,0	1,085	1,373	1,229	--
13	15/10	8388	838,8	3500	1400	88	3400	--	--	--	--	--	--	--
14	22/10	9420	942	3300	1900	320	3900	--	12,2	0,3	0,782	--	--	--
15	29/10	--	--	--	--	--	--	--	13,3	0,3	0,459	0,585	--	--
16	5/11	5810	581	2100	710	<30	3000	--	--	--	0,306	1,679	--	--
17	12/11	--	--	--	--	--	--	--	12,5	0,6	0,618	--	--	--
18	20/11	--	--	--	--	--	--	--	11,7	0,6	--	1,065	--	--
19	26/11	132	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
20	3/12	139	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
21	10/12	146	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
22	15/12	151	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--